



UNIVERSITÉ de CAEN/BASSE NORMANDIE

U.F.R de Sciences

ECOLE DOCTORALE Structure, Information, Matière et Matériaux

T H È S E

présentée par

M. Stéphane NORMAND

et soutenue

le 5 octobre 2001

en vue de l'obtention du

DOCTORAT de L'UNIVERSITÉ de CAEN

Spécialité : Sciences de la matière et génie des procédés

(arrêté du 30 mars 1992)

Titre :

**Conception, réalisation et caractérisation
d'un dispositif de détection neutronique
basé sur l'utilisation de scintillateurs
plastiques dopés au Bore**

JURY :

M. C. BOURGEOIS	IPN, Université de Paris VII,	Rapporteur
M. P. FLEURY	COGEMA la Hague	
M. S. HAAN	CEA Saclay	
M. F. HANAPPE	PNTPM, Université Libre de Bruxelles,	Rapporteur
M. J.-F. LECOLLEY	LPC, Université de Caen	
M. M. LOUVEL	LPC, Université de Caen,	Directeur de thèse

REMERCIEMENTS

Ce travail a été réalisé au Département d'Instrumentation et de Métrologie des Rayonnements Ionisants du CEA-Saclay, dans le Service d'Instrumentation et d'Applications des Rayonnements Ionisants, dont je remercie les responsables successifs François Pupat, Wallerand d'Hespel, Annick Nguyen et Maurice Mazière. Cette thèse est un travail de collaboration entre le CEA et la COGEMA. Elle n'aurait pas pu voir le jour sans l'action fédératrice de, tour à tour, Jean Mauquest et de Patrice Fleury et de leur ténacité, qu'ils en soient remerciés. Les soutiens et les avis éclairés de Hervé Toubon et Hervé Masson de COGEMA m'ont été précieux durant ces trois années.

Cette thèse s'est déroulée sous la direction de Michel Louvel. Je le remercie pour la confiance qu'il m'a accordée, pour son aide et sa disponibilité durant ces trois années, malgré la distance. Serge Haan m'a encadré durant cette thèse avec discernement et je tiens à le remercier de m'avoir offert l'opportunité de continuer à sévir dans le milieu de la recherche au sein du Laboratoire de Technologies des Détecteurs.

Je remercie Jean-François Lecolley pour m'avoir fait l'honneur de présider mon jury de thèse, ainsi que Francis Hanappe et Christian Bourgeois pour avoir gentiment accepté la lourde charge de rapporteur. Je remercie l'ensemble du jury pour m'avoir donné le grade de docteur et félicité.

Une thèse, c'est l'œuvre d'un étudiant mais c'est également un travail collectif....D'ailleurs, tout l'art du doctorant réside dans ses capacités à faire travailler ensemble des gens d'horizons très variés. Aussi, je ne serais pas honnête si je n'associais pas toutes les personnes dont les noms vont suivre et qui, d'une façon ou d'une autre, m'ont permis de réaliser ce travail.

Un grand merci à l'équipe détecteur du Laboratoire de Physique Corpusculaire de Caen pour sa disponibilité au cours de ma semaine passée à chercher à séparer les neutrons des gamma, mes pensées vont tout particulièrement en direction de Jean Marc Fontbonne et Joël Tillier pour leurs nombreux conseils et les discussions autour du café de 7h30...

Toujours à Caen, je tiens à remercier Isabelle Dez de l'équipe des thio-organiques de l'ISMRA pour sa disponibilité et ses mesures auprès de l'appareillage de RMN 400 MHz.

J'exprime également toute ma gratitude envers l'équipe du Van de Graaff de l'INSTN de Saclay dont j'ai pu apprécier la disponibilité et les compétences durant les manips de caractérisation des scintillateurs.

Je ne me serais pas lancé dans l'aventure (car cela en fut une...) de la fabrication des scintillateurs si Brigitte Mouanda n'avait pas été là pour m'aider et me guider dans et sur le monde fascinant (mais complexe) de la chimie des polymères. D'une façon plus générale, merci aux membres du Laboratoire des Composés Organiques qui ont toujours su répondre présent tant pour mes questions d'optique que pour l'analyse physico-chimique de mes scintillateurs (en particulier Paul Raimond, Pierre-Alain Chollet et Vincent Dumarcher).

Merci également aux (Nicolas)² Saurel et Huot du Labo de Modélisation et de Mesures Nucléaires, l'un pour avoir agrémente joyeusement l'ambiance du G3 et l'autre pour avoir

toujours su se rendre disponible pour répondre de façon exhaustive à toutes mes questions existentielles concernant le code de calcul MCNP. Merci à Mehdi Gmar pour ses aides précieuses en Scientific Word, Mr Roux (prononcer RouXe) pour ses conseils.

Enfin, je tiens à remercier mes co-bureaux, à savoir (on commence par la plus ancienne !!!) Dr Dominique Tromson (ex-thésarde, ex-ATERe et nouvelle « agente » CEA) pour sa bonne humeur, pour ses performances en escalade et ses conseils en couleurs de fond powerpoint....

Et Céline Monsanglant-Louvet....la pauvre, la mettre dans mon bureau juste à partir du moment où j'ai commencé à rédiger ma thèse...il y a vraiment des chefs sans-cœur, n'est ce pas Céline ?

Merci à l'ensemble de l'équipe du labo du LTD (lire et comprendre Labo Technologie des Détecteurs et non LimiTeD !!!). En particulier, merci à Philippe Bergonzo d'avoir, malgré son emploi du temps chargé, su prendre un peu de temps pour les relectures de ma prose anglaise. Merci également à Stéphanie pour ses conseils et son langage si imagé face à la technique, qui, je crois, laissera à tout jamais des traces au sein du laboratoire, n'est ce pas Dominique ?

Merci également à Philippe Delacour et Benoît Guizard (tous deux futurs ingénieurs du soir...il faut comprendre qu'ils bossent aussi le soir....en tout cas bon courage pour votre mémoire à tous les deux), Christine Mer, Jean Claude Vuillemin et Thierry Domenech (les deux inséparables, la « dream team » du LTD) pour m'avoir accueilli et égayé ces trois années.

Je tiens également à féliciter mes ex-stagiaires Magali Loison, Adrien Loyat et Christophe Marty pour m'avoir filer un coup de main et surtout pour m'avoir supporté pendant la durée de leur stage.

Voilà, je crois pas en avoir oublié plus de 88 % ... Que ceux oubliés ne se vexent pas, c'est ma mémoire et mon grand âge qui me joue des tours....

Stéphane Normand
le 9 octobre 2001

A Solweig et Florence,

A ma famille.

Conception et réalisation d'un dispositif de détection
neutronique basé sur l'utilisation de scintillateurs
plastiques dopés au Bore.

S. Normand

19 octobre 2001

Table des matières

1	Introduction	13
2	La détection des neutrons	17
2.1	Objectif de la mesure neutronique	17
2.2	Origine du rayonnement neutronique	17
2.2.1	La fission	18
2.2.2	Les réactions nucléaires	19
2.3	Réactions possibles pour la détection	20
2.3.1	Les diffusions	21
2.3.2	Les captures	21
2.4	Les détecteurs existants	23
2.4.1	Les détecteurs à gaz	23
2.4.2	Les détecteurs semi-conducteurs	26
2.4.3	Les scintillateurs	27
2.4.4	Comparaison des différents détecteurs disponibles	29
2.5	Applications de la détection neutronique	30
2.5.1	Contrôle - Commande des réacteurs	30
2.5.2	Les ateliers de mesures neutrons de COGEMA la Hague	31
2.5.3	Radioprotection - Contrôle de la matière fissile	33
2.5.4	Motivations et objectifs de la thèse	34
3	Les scintillateurs	37
3.1	Généralités	37
3.1.1	Loi de Stokes	37
3.1.2	Scintillateurs inorganiques	38
3.1.3	Scintillateurs organiques	41
3.2	Caractéristiques des scintillateurs organiques solides	42
3.3	Traitement théorique de la production de lumière	43
3.3.1	Mécanismes de la scintillation	44
3.3.2	Phénomènes de "quenching"	46
3.3.3	"Wavelength - shifter"	46
3.3.4	Les matériaux luminescents	47
3.4	Loi de Birks	47

4	Fabrication et caractérisation optique de scintillateurs plastiques	51
4.1	Constituants	51
4.1.1	Composés scintillants	51
4.1.2	Les éléments dopants	53
4.2	Mode opératoire	55
4.2.1	Principe de la polymérisation	56
4.2.2	Purification des produits	58
4.2.3	Dégazage et mélange	59
4.2.4	Cycle thermique	59
4.2.5	Méthode de l'injection	60
4.2.6	Résultat	60
4.3	Caractérisation optique	61
4.3.1	Mesure de l'indice de réfraction optique	61
4.3.2	Caractéristiques spectrales infra-rouges des constituants scintillants et dopants	63
4.3.3	Caractérisation par spectrométrie UV - visible des scintillateurs . .	67
4.3.4	Mesure de la longueur de demi-atténuation	67
4.3.5	Caractérisation par spectrofluorimétrie	70
4.4	Analyse RMN	71
5	Mise en oeuvre du scintillateur	75
5.1	Couplage optique	75
5.2	Guide lumière utilisé	77
5.3	Le photomultiplicateur XP2020	77
5.4	Revêtements utilisés	80
5.4.1	Présentation	80
5.4.2	Les réflecteurs	80
5.4.3	Les diffuseurs	81
5.4.4	Expérience de caractérisation	82
5.4.5	Conclusions	83
5.5	Réponse temporelle	84
5.5.1	Mesures	85
5.5.2	Ajustement de la partie descendante de l'impulsion	85
6	Caractérisation sous faisceaux de particules	87
6.1	Parcours des ions dans les scintillateurs	87
6.2	Source étalon	88
6.3	Sous faisceaux de protons au Van de Graaff	90
6.3.1	Présentation du dispositif expérimental	90
6.3.2	Mesures	92
6.3.3	Résultats	92
6.4	Sous rayonnements alpha au laboratoire	95
6.4.1	Dispositif expérimental	95
6.4.2	Mesures	96

6.4.3	Résultats	97
6.5	Détermination des paramètres de luminescence - loi de Birks	99
6.5.1	Méthode utilisée pour l'ajustement	99
6.5.2	Résultats des ajustements aux mesures	100
6.6	Tenue aux radiations	104
6.7	Réponse aux neutrons	104
7	Modélisation de la réponse neutronique et lumineuse	107
7.1	Adéquation du code de calcul neutronique	107
7.2	Simulation neutronique à l'aide de MCNP	108
7.2.1	Présentation du code de calcul	108
7.2.2	Spectre en énergie des neutrons	108
7.2.3	Optimisation de la géométrie pour la détection de neutrons rapides	110
7.2.4	Nombre de chocs nécessaires pour thermaliser un neutron	114
7.2.5	Durée de vie d'un neutron dans ce type de scintillateur dopé	115
7.2.6	Efficacité globale de détection	117
7.3	Simulation de la production et de la propagation de la lumière	120
7.3.1	Présentation du code de calcul	120
7.3.2	Modifications apportées à ce code de calcul	122
7.3.3	Influence de la géométrie sur la collecte des photons	123
7.3.4	Génération de photons pour des alpha et des protons	124
7.4	Couplage des deux codes de simulation	125
7.4.1	Pourquoi ce couplage ?	125
7.4.2	Démarche adoptée	126
7.4.3	Résultats de la simulation globale du scintillateur	128
7.4.4	Comparaison avec un spectre neutron expérimental	130
8	Discrimination neutron - gamma	133
8.1	Principes de la discrimination de particules	133
8.1.1	Sensibilité vis à vis du rayonnement gamma	133
8.1.2	Problématique de la discrimination	135
8.2	Méthodes de discrimination	136
8.2.1	Rappels bibliographiques	136
8.2.2	Signaux observables	137
8.3	Méthode analogique : le passage par zéro	140
8.3.1	Mise en oeuvre expérimentale	140
8.3.2	Résultats	141
8.3.3	Performances de la méthode	143
8.4	Méthode numérique : la comparaison de charges	144
8.4.1	Mise en oeuvre expérimentale	144
8.4.2	Montage mixte analogique et numérique	147
8.4.3	Résultats	148
8.4.4	Performances de la méthode de discrimination	154
8.4.5	Conclusions	156

9 Applications	157
9.1 Mesure des émetteurs neutrons dans les fûts de déchets.	157
9.1.1 Généralités sur les multiplicités neutroniques	157
9.1.2 Algorithmes disponibles	159
9.1.3 Méthode de mesure	160
9.1.4 Principe de mise en oeuvre du dispositif de détection	161
9.2 Les fibres dopées scintillantes	164
9.2.1 Fabrication de fibres dopées scintillantes	164
9.2.2 Utilisation de fibres dopées scintillantes	165
9.3 Spectrométrie neutronique	166
9.3.1 Principe	166
9.3.2 Dispositif expérimental	167
9.3.3 Etalonnage	170
9.3.4 Evaluation par simulations des performances	170
9.4 Dosimétrie	171
10 Conclusion	175
A Principaux radioéléments émetteurs de neutrons	189

Liste des figures

2.1	Evolution de la section efficace de capture neutronique des noyaux de Bore 10 en fonction de l'énergie des neutrons incidents.	22
2.2	Mode de fonctionnement des détecteurs à gaz en fonction de la tension appliquée aux bornes des électrodes.	23
2.3	Schéma d'un détecteur à gaz à Hélium 3 [Mech 73]	26
3.1	Décalage de Stokes.	37
3.2	Schéma des niveaux énergétiques pour les deux types de scintillateurs inorganiques	40
3.3	Schéma des niveaux énergétiques moléculaires expliquant les mécanismes de fluorescence et phosphorescence.	45
3.4	Non linéarité de la réponse lumineuse d'un scintillateur plastique non dopé BC400.	49
4.1	Spectre d'absorption et d'émission du p-terphényl dans le cyclohexane. . .	53
4.2	Spectre d'absorption et d'émission du POPOP dans le cyclohexane. . . .	54
4.3	Formule développée du p-terphényl	54
4.4	Formule développée du POPOP	55
4.5	Formule développée du styrène	55
4.6	Formule développée du polystyrène	56
4.7	Formule développée du o-carborane	56
4.8	Schéma de l'appareillage de distillation utilisé.	58
4.9	Plan du moule destiné à la réalisation de scintillateur	61
4.10	Photographie d'un scintillateur plastique illuminé par une lampe U.V. . . .	61
4.11	Dispositif de mesure de l'indice optique du scintillateur	62
4.12	Ajustement d'une courbe de Sellmeier aux mesures de l'indice optique d'un scintillateur plastique dopé au bore	63
4.13	Spectre FTIR de l'ortho-carborane dissout dans le polystyrène	64
4.14	Spectre FTIR du POPOP	65
4.15	Spectre FTIR du polystyrène	65
4.16	Spectre FTIR du mélange scintillant polystyrène + p-terphényl + POPOP	65
4.17	Spectre FTIR du p-terphényl	66
4.18	Spectre FTIR de l'ortho-carborane	66
4.19	Mesure de la transmission optique d'un scintillateur plastique dopé au bore.	67
4.20	Dispositif utilisé pour mesurer l'atténuation du matériau scintillant	68

4.21	Comparaison des spectres de fluorescence de scintillateurs plastiques dopés ou non au bore	71
4.22	Spectre RMN ^1H du styrène réalisé dans du toluène deutéré	72
4.23	Formule du styrène et du polystyrène	72
4.24	Spectre RMN ^1H de l'orthocarborane dissout dans du polystyrène réalisé dans du toluène deutéré	73
4.25	Spectre RMN ^1H du o-carborane réalisé dans du toluène deutéré	73
4.26	Spectre RMN ^1H du polystyrène mélangé à du p-terphényl et du POPOP réalisé dans du toluène deutéré	74
4.27	Spectre RMN ^1H du polystyrène pur réalisé dans du chloroforme deutéré CDCl_3	74
5.1	Comparaison des propriétés de transmission de la résine élastomère et de la graisse Dow Corning utilisée.	76
5.2	Spectre d'absorption de l'Altuglass	77
5.3	Coupe schématique du fonctionnement d'un photomultiplicateur [Photonis 00].	78
5.4	Réponse de différentes photocathodes en fonction de la longueur d'onde de la lumière incidente [Photonis 00].	79
5.5	Schéma électronique du pont diviseur VD124k	79
5.6	Dispositif expérimental utilisé pour tester les différents types de revêtements	82
5.7	Influence du revêtement sur la quantité de photons recueillis. Les canaux sont proportionnels aux nombres de photons recueillis.	83
5.8	Réflectance du matériau diffusant Labsphere WRC-680 à base d'oxyde de Baryum.	83
5.9	Réponse temporelle des scintillateurs plastiques dopés au bore soumis à un flux de rayonnement neutron - gamma mélangé. Signal provenant de la dynode D12 du pont diviseur.	85
5.10	Ajustement avec un modèle à double exponentielle pour une impulsion provenant d'un scintillateur plastique dopé au Bore.	86
6.1	Evolution du parcours des alpha et des protons dans un scintillateur plastique dopé au Bore obtenu par simulation SRIM 2000 [Ziegler 94]	88
6.2	Dispositif expérimental mis en place pour connecter le scintillateur aux faisceaux de particules de l'accélérateur.	88
6.3	Spectre d'une source alpha d'Américium 241 dissoute dans un scintillateur liquide : l'Ultima Gold	89
6.4	Schéma de l'accélérateur Van de Graaff	91
6.5	Exemple de spectre obtenu avec la diode Silicium pour des protons de 2 MeV.	92
6.6	Photo de l'expérience menée auprès du Van de Graaff de l'I.N.S.T.N. . . .	93
6.7	Spectres protons obtenus pour le scintillateur plastique dopé au bore développé au laboratoire (Scintillateur GCO)	93
6.8	Réponse du scintillateur développé au laboratoire (GCO) pour des protons de différentes énergies	94

Liste des figures

6.9	Réponse du scintillateur BC454 pour des protons de différentes énergies . .	94
6.10	Comparaison des différents spectres alpha obtenus pour le scintillateur développé au laboratoire.	97
6.11	Spectres alpha pour le scintillateur GCO développé au laboratoire	97
6.12	Spectres alpha pour le scintillateur BC454	98
6.13	Spectres alpha pour le scintillateur non dopé AMCRYS-H	98
6.14	Ajustement de la loi de Birks aux données alpha du scintillateur commercial BC454 et à celles du scintillateur développé au laboratoire	101
6.15	Ajustement de la loi de Birks aux données pour les protons du scintillateur commercial BC454 et du scintillateur développé au laboratoire	102
6.16	Ajustement de la loi de Birks pour des particules alpha : Comparaison de trois scintillateurs testés	103
6.17	Spectre en énergie d'un scintillateur plastique dopé au bore BC454 irradié par un flux de neutrons thermiques issu d'une source d'AmBe thermalisée.	105
6.18	Comparaison du spectre neutronique obtenu pour un scintillateur plastique non dopé et un scintillateur plastique dopé au bore	106
7.1	Spectre de Watt donnant la répartition en énergie des neutrons simulés par MCNP	109
7.2	Méthode utilisée pour le calcul de l'angle solide	110
7.3	Géométrie du dispositif simulé pour une source ponctuelle et un scintillateur cylindrique (vue en coupe).	111
7.4	Optimisation du diamètre des cylindres simulés pour des détecteurs de différentes longueurs	113
7.5	Optimisation de l'épaisseur du détecteur parallélépipédique pour différentes longueurs	113
7.6	Optimisation du diamètre d'un scintillateur dopé au bore cylindrique pour thermaliser l'ensemble des neutrons incidents dont le spectre en énergie est centré sur 500 keV et s'étale jusqu'à 4 MeV.	114
7.7	Nombre de chocs nécessaires pour thermaliser un neutron en fonction de son énergie incidente.	115
7.8	Temps nécessaire pour qu'un neutron passe d'une énergie de 1 MeV à une énergie de 25 meV dans un scintillateur plastique dopé au bore	116
7.9	Durée d'une capture d'un neutron de 1 MeV dans un scintillateur plastique dopé au bore	117
7.10	Chronogramme de l'histoire d'un neutron dans un scintillateur plastique dopé au Bore	118
7.11	Géométrie du dispositif de détection de l'A.C.C. simulée par MCNP	119
7.12	Comparaison de l'efficacité de détection pour des scintillateurs dopés au bore et des détecteurs à base d'Hélium 3 mis en oeuvre dans l'A.C.C.	120
7.13	Disposition des photomultiplicateurs et du scintillateur simulée par le code de calcul STof	123
7.14	Influence du lieu de génération des photons sur leur probabilité de collecte au niveau de la photocathode.	124

7.15	Spectres simulés par le code de calcul STOf des charges générées au niveau du photomultiplicateur par des particules alpha de différentes énergies. . .	125
7.16	Spectres simulés par le code de calcul STOf des charges générées au niveau du photomultiplicateur par des protons de différentes énergies.	126
7.17	Synoptique du couplage entre le code MCNP et le code de calcul de scintillation STOf.	127
7.18	Spectre simulé issu d'un scintillateur plastique non dopé irradié par des neutrons rapides	129
7.19	Spectre obtenu pour des alpha générés au centre du scintillateur.	129
7.20	Spectre simulé issu d'un scintillateur plastique dopé au Bore irradié par un flux de neutrons rapides	131
7.21	Spectre obtenu pour des alpha de 5,45 MeV interagissant directement avec un scintillateur plastique dopé au Bore	131
7.22	Comparaison du spectre neutronique d'un scintillateur plastique non dopé et d'un scintillateur plastique dopé au Bore	132
8.1	Section efficace d'interaction des gamma avec l'Hélium 3 en fonction de leur énergie.	134
8.2	Section efficace d'interaction des gamma avec un scintillateur plastique dopé à 5 % en Bore naturel.	134
8.3	Oscillogramme généré par une source alpha d' ²⁴¹ Am interagissant sous vide avec un scintillateur plastique dopé au Bore.	138
8.4	Oscillogramme d'une source alpha d' ²⁴¹ Am sous air.	138
8.5	Oscillogramme de la réponse d'un scintillateur plastique dopé au Bore lorsqu'il est soumis à une irradiation alpha (²⁴¹ Am) et bêta (Sr-Y).	139
8.6	Principe de la discrimination de particules par la méthode du passage par zéro	141
8.7	Schéma du dispositif de discrimination neutron gamma par la méthode du passage par zéro.	142
8.8	Discrimination neutron - gamma mise en oeuvre pour un scintillateur plastique dopé au bore BC454. Source AmBe non thermalisée.	142
8.9	Discrimination neutron rapide - gamma par la méthode du passage par zéro pour un scintillateur plastique non dopé. Source AmBe non thermalisée. . .	143
8.10	Schéma du dispositif expérimental mis en oeuvre pour la méthode de discrimination de particules dite par comparaison de charges.	145
8.11	Synoptique du programme d'acquisition utilisant le module V465	146
8.12	Synoptique du programme d'acquisition utilisant le module V792	147
8.13	Répartition temporelle des signaux pour la discrimination neutron - gamma par la méthode de la comparaison de charges.	148
8.14	Montage permettant d'améliorer les performances de discrimination neutron - gamma de la méthode de la comparaison de charges.	149
8.15	Discrimination par la méthode de la comparaison de charges mise en oeuvre avec un scintillateur plastique dopé au Bore soumis à un flux mixte alpha et gamma provenant d'une source d'Américium 241.	150

8.16	Scintillateur plastique dopé au Bore sous rayonnement gamma seul. Méthode de discrimination par comparaison de charges.	150
8.17	Discrimination neutrons rapides et gamma à l'aide d'une cellule de détection DEMON contenant un scintillateur liquide, le NE213.	152
8.18	Scintillateur plastique dopé au Bore sous flux mixte neutrons rapides et gamma.	153
8.19	Scintillateur plastique dopé au Bore sous flux mixte de neutrons thermiques et de rayonnement gamma.	153
8.20	Cas d'un scintillateur non dopé soumis à un flux mixte de neutrons thermiques et gamma.	153
8.21	Oscillogramme des signaux provenant du dispositif électronique décrit précédemment. Le canal 1 correspond à la voie "charge totale", le canal 2 à la voie "charge retardée" et le canal 3 représente la porte autorisant le codage des convertisseurs.	154
8.22	Scintillateur plastique dopé au Bore sous rayonnement gamma seul. Mise en oeuvre utilisant le montage mixte analogique et numérique.	155
8.23	Scintillateur plastique dopé au Bore sous rayonnement alpha et gamma d'une source d'Américium 241.	155
8.24	Scintillateur plastique dopé au Bore sous un flux mixte de neutrons, d'alpha et de gamma. Discrimination neutron - alpha et gamma.	156
9.1	Evolution de la mesure de multiplicités en fonction de la durée de vie du neutron dans la cellule de mesure. La valeur 100 μ s représente les dispositifs à base d'Hélium 3 et la valeur 10 μ s représente les dispositifs utilisant des scintillateurs plastiques dopés au Bore.	159
9.2	Evolution des multiplicités neutroniques en fonction du radioélément. . . .	162
9.3	Schéma du dispositif de test préliminaire permettant de mesurer les multiplicités neutroniques.	163
9.4	Montage du dispositif permettant de mesurer les multiplicités neutroniques	163
9.5	Dispositif expérimental utilisé pour la mise en oeuvre d'une fibre scintillante dopée au Bore.	165
9.6	Comparaison des spectres obtenus pour une fibre optique scintillante dopée au Bore soumise ou non à un flux de neutrons thermiques.	166
9.7	Schéma du dispositif permettant de réaliser une spectrométrie neutronique par la technique de la double coïncidence.	168
9.8	Chronogramme du dispositif électronique utilisé pour réaliser une spectrométrie neutronique.	168
9.9	Chronogramme de la voie temporelle du dispositif de spectrométrie neutronique	169
9.10	Chronogramme accumulé pour la voie temporelle. La décroissance exponentielle à partir de la voie de déclenchement Ch4 de l'histogramme apparaît sur cette figure.	170
9.11	Spectre neutronique simulé. Energie des neutrons égale à 250 keV.	171
9.12	Spectre neutronique simulé. Neutrons d'énergie égale à 10 MeV.	172

Chapitre 1

Introduction

La gestion efficace et cohérente des déchets nucléaires est un enjeu important pour rendre la production d'énergie nucléaire durable. Or la fiabilité du stockage de ce type de déchets dépend de la connaissance de leurs propriétés tant chimiques que radiologiques par l'ANDRA¹ qui est l'organisme chargé de leur gestion pour la France. En effet, la connaissance précise des quantités d'actinides présentes dans les fûts de déchets est essentielle pour le choix d'un stockage approprié. Ces déchets radioactifs ont préalablement été conditionnés par un exploitant nucléaire qui est la COGEMA.² en France. Cette société caractérise l'activité résiduelle des fûts de déchets par des mesures neutroniques et de spectrométrie gamma avant de les envoyer pour stockage sur le site de l'ANDRA.

L'ensemble de ce projet de recherche fait l'objet d'une collaboration entre le CEA.³ et la COGEMA. au sein d'un Programme d'Intérêt Commun sur les détecteurs neutroniques plans de grandes surfaces. En effet, les utilisateurs de postes de mesures neutroniques ont besoin de détecteurs ayant à la fois une efficacité de détection importante et engendrant une faible durée de vie du neutron dans la cellule de mesure. Pour mesurer avec précision ces matières, il est nécessaire d'utiliser des méthodes dites de coïncidences neutroniques très sensibles aux deux paramètres suivants, à savoir, l'efficacité de détection et la durée de vie du neutron dans le détecteur. Deux types de mesures neutroniques peuvent être envisagées, les mesures passives pour le ^{240}Pu et le ^{244}Cm et les mesures actives pour l' ^{235}U , le ^{239}Pu et le ^{241}Pu qui constituent la matière fissile. Or le coût de stockage des déchets est fonction de leur activité résiduelle. L'exploitant doit donc disposer d'un appareillage lui permettant de mesurer cette activité avec précision dans les fûts de déchets sans surévaluer l'activité. Toute surévaluation de l'activité conduit à des surcoûts liés au stockage final.

Le DIMRI⁴, laboratoire au sein duquel s'est déroulée cette thèse, conçoit et réalise des dispositifs de détections nucléaires basés sur les trois familles de détecteurs : les détecteurs à gaz, les détecteurs à semi-conducteurs et les scintillateurs. En effet, le développement

¹ Agence Nationale pour la gestion des Déchets RAdioactifs

² COmpagnie GEnérale des MATières nucléaires

³ Commissariat à l'Energie Atomique

⁴ Département d'Instrumentation et de Métrologie des Rayonnements Ionisants

de systèmes, initié par des besoins industriels, est une des principales missions de ce laboratoire.

L'approche choisie pour ces travaux de recherche consiste à utiliser, pour la détection des neutrons provenant des fûts de déchets, des scintillateurs plastiques dopés au Bore en lieu et place des détecteurs à gaz à base d'Hélium 3. Ces scintillateurs ont la propriété d'être sensibles à la fois aux neutrons rapides et aux neutrons thermiques. Des progrès significatifs sont ainsi attendus tant sur le plan de l'efficacité globale de détection neutronique que sur le plan de la durée de vie du neutron dans le détecteur. Cette thèse participe, par l'étude même du matériau scintillant, de son dopage et de sa caractérisation, à la conception d'un dispositif de détection neutronique. La modélisation du comportement neutronique, de la génération de lumière et de son transport au sein du scintillateur a également été mise en oeuvre. Enfin, les performances de détection et de discrimination entre le rayonnement neutronique et gamma sont étudiées.

La première partie de ce travail est consacrée aux matériaux scintillants, à leur étude, leur fabrication et leur caractérisation tant chimique, optique que structurelle. Le chapitre II rappelle les différents mécanismes d'interaction des neutrons avec la matière. Ces informations orientent les possibilités techniques envisagées pour la réalisation de détecteurs de neutrons. Leurs performances respectives sont également discutées. Le chapitre III présente le principe de la scintillation ainsi que le phénomène d'émission de lumière dans les matériaux scintillants tant inorganiques qu'organiques, et plus spécifiquement dans les scintillateurs plastiques. Le chapitre IV s'intéresse à la fabrication et au dopage des scintillateurs plastiques dopés au Bore. Ce chapitre est également consacré à la caractérisation optique et chimique des scintillateurs.

La seconde partie de ce travail consiste en la réalisation de dispositifs expérimentaux utilisant des scintillateurs plastiques dopés au Bore pour la détection neutronique et pour leur caractérisation sous rayonnement. Le chapitre V présente la mise en oeuvre des scintillateurs (photomultiplicateur utilisé, revêtements, etc.). Le chapitre VI s'intéresse plus particulièrement à la caractérisation sous faisceaux de particules nucléaires (proton et alpha) des scintillateurs plastiques dopés ou non au Bore. Ces travaux ont permis de mesurer la réponse lumineuse des scintillateurs et d'en déduire les coefficients de luminescence ou coefficients de Birks pour les scintillateurs étudiés.

La troisième partie de cette étude s'attache à développer la modélisation et la simulation de ces scintillateurs plastiques dopés au Bore. Le chapitre VII présente, dans un premier temps, la simulation de la réponse neutronique de ce type de détecteur par code de calcul M.C.N.P.⁵. Ce travail a permis d'optimiser la géométrie des détecteurs compte-tenu des flux neutroniques à analyser. Dans un second temps, la production et la propagation des photons générés par le phénomène de scintillation ont été simulées grâce à un code de calcul spécifique. Afin de conduire une simulation globale de la réponse des scintillateurs lorsqu'ils sont soumis à un rayonnement neutronique, un couplage entre le code de

⁵Monte Carlo N-Particles [Briesmeister 97]

transport neutronique et le code de génération et de transport de lumière a été réalisé. Les résultats de ces simulations sont discutés dans ce chapitre et comparés à ceux obtenus expérimentalement.

La quatrième partie de cette thèse s'intéresse à la mesure neutronique proprement dite. Le chapitre VIII expose la mise en oeuvre des méthodes disponibles de discrimination entre les neutrons et les gamma dans ces scintillateurs. Les résultats entre ces méthodes ont été rapprochés afin de choisir la meilleure en fonction des applications visées pour la détection neutronique. Le chapitre IX réalise une revue de l'ensemble des applications pouvant mettre en oeuvre ce type de scintillateurs. Plus particulièrement, la possibilité de mise en oeuvre de ces scintillateurs dopés sera discutée pour les dispositifs de mesure des multiplicités neutroniques qui servent à évaluer la quantité d'actinides résiduelle présente dans les fûts de déchets de faibles et de très faibles activités.

Chapitre 2

La détection des neutrons

2.1 Objectif de la mesure neutronique

Les neutrons sont une catégorie de particules qui ne peuvent être détectées qu'indirectement. En effet, n'ayant pas de charge électrique, les neutrons ne peuvent interagir avec la matière que par chocs élastiques, inélastiques ou par réactions de capture avec les noyaux. Or leur détection est vitale pour l'exploitation des réacteurs nucléaires et celle des usines de retraitement. En physique fondamentale, leur présence ou leur absence signe l'existence de particules (tels les neutrinos [Wang 99]) [Harvey 79]. Ils permettent ainsi l'étude des structures particulières des noyaux [Buta 00].

Dans les usines électronucléaires, l'objectif de la mesure neutronique est double. C'est une mesure précise nécessaire pour le contrôle - commande des réacteurs afin d'en assurer les paramètres de fonctionnement. Mais, c'est aussi une mesure importante de sûreté - sécurité permettant de déclencher, en cas d'incidents ou d'accidents, les dispositifs de sauvegarde du coeur du réacteur et de l'environnement.

Dans les usines de retraitement, l'exploitant doit pouvoir contrôler, tout au long du retraitement, la quantité d'actinides présente dans le procédé pour des raisons de sûreté - criticité. Il doit, en outre, être capable de trier les déchets en fonction de l'activité des fûts qu'il génère en fin de procédé. C'est dans cette optique qu'ont été développés des postes de mesures neutroniques actifs et passifs sur les sites de COGEMA de la Hague et de Marcoule. Seules les mesures neutroniques passives seront abordées au cours de ce travail.

2.2 Origine du rayonnement neutronique

Deux voies de production sont possibles pour leur génération :

- par fission spontanée ou induite de noyaux lourds,
- par réaction de capture, par exemple de type (α, n) ou (p, n) sur des noyaux légers.

2.2.1 La fission

Le rayonnement neutronique naturel provient essentiellement de la fission de noyaux lourds en noyaux plus légers. Certains noyaux ont la propriété de se casser spontanément en deux parties asymétriques, lors d'un processus qualifié de fission spontanée. Ce processus correspond à des noyaux dont le rapport $\frac{Z^2}{A}$ est supérieur ou égal à 44 [Evans 61]. La distribution observée des masses donne en moyenne un fragment dont la masse se situe autour de 95 u.m.a. et un autre dont la masse se trouve autour de 140 u.m.a. à cause des effets de remplissage de couches.

La fission est qualifiée d'induite si elle a été engendrée par une collision entre le noyau et un neutron. Si le neutron dispose d'une énergie importante, la fission génère deux produits dont les masses sont très proches l'une de l'autre. Ce type de fission est qualifiée de symétrique.

Lorsqu'un noyau d'Uranium fissionne, quelques neutrons et gamma sont émis simultanément (ce sont les gamma ou les neutrons dits prompts puisqu'émis en moins de 10^{-13} s). La multiplicité de cette réaction de fission donne, de façon statistique, le nombre de neutrons émis simultanément par fission. Les deux produits de fission ne sont pas émis au repos, puisqu'ils disposent, à eux deux, d'environ 160 MeV d'énergie sous forme d'excitation des noyaux et d'énergie cinétique. Lors de leur retour à l'état fondamental, ces deux fragments de fission vont émettre des neutrons et des gamma sur une échelle de temps allant du dixième de seconde à plusieurs secondes. Cette émission de particules est alors qualifiée de retardée. L'ensemble de ces neutrons et gamma (prompts et retardés) permet de caractériser les actinides et joue donc un rôle prépondérant dans l'ensemble des techniques NDA (Non Destructive Assay) des colis de déchets.

La fission spontanée est un processus quantique qui implique le franchissement d'une barrière de potentiel de la part des fragments de fission. La hauteur de la barrière de potentiel à franchir est fonction du Z et du A du noyau considéré. Les taux de fission pour les isotopes aux nombres de neutrons et de protons impairs - pairs est 10^3 plus faible que celui pour les isotopes aux nombres de neutrons et de protons pairs - pairs, et, 10^5 plus faible que celui pour les isotopes impairs - impairs. Ces différences importantes sont dues à des effets de spin.

En effet, le spin nucléaire dont dispose le noyau qui va fissionner, lorsqu'il est à l'état fondamental, doit être conservé même après une fission. Les orbites de moments angulaires quantiques des neutrons ou des protons, pris individuellement, ont des énergies différentes en fonction de l'état de déformation du noyau. L'état d'énergie minimale pour le noyau non déformé n'est, très souvent, pas l'état d'énergie minimale du noyau déformé. Dans le cas d'un noyau pair - pair, dont le spin à l'état fondamental est 0, les paires de neutrons et de protons sur les orbites les plus excentrées peuvent coupler leur spin simultanément et ainsi conserver le niveau global de spin égal à zéro même lors d'un déplacement vers des niveaux énergétiques du noyau plus faible (c'est à dire même lors d'une déformation du noyau). Dans le cas de noyaux impairs, un seul neutron ou proton doit occuper l'orbite

2.2. ORIGINE DU RAYONNEMENT NEUTRONIQUE

nucléaire la plus éloignée du noyau afin de conserver le spin nucléaire global du noyau, malgré une énergie supplémentaire disponible. Cet effet a pour conséquence d'augmenter la barrière de potentiel et de rendre les isotopes impairs - pairs et pairs - impairs moins sensibles à la fission spontanée que les isotopes pairs - pairs [Reilly 91].

Les isotopes avec des nombres impairs de neutrons ou de protons n'ont pas des rendements de fission spontanée importants. Cependant, les isotopes avec un nombre impair de neutrons peuvent fissionner facilement sous l'effet d'un bombardement par des neutrons de faibles énergies. L'absorption de ce neutron supplémentaire crée un noyau composé dont l'énergie d'excitation est très proche de la barrière de fission. L'Uranium 235 et le Plutonium 239 sont des noyaux pairs - impairs qui peuvent fissionner très facilement s'ils sont bombardés par des neutrons thermiques, alors que leur taux de fission spontanée est très faible. Ces isotopes sont qualifiés de fissiles alors que les isotopes pairs - pairs du type Uranium 238 et Plutonium 240 sont qualifiés de fertiles car ils génèrent des noyaux qui sont eux-mêmes fissiles¹. Par exemple, le taux de fission spontanée conduit à une émission de 1020 neutrons.s⁻¹.g⁻¹ pour le Plutonium 240, qui est de loin l'émetteur de neutrons le plus courant dans les déchets plutonifères de moyenne activité.

Avec l'augmentation des taux de combustion des assemblages, le ²⁴⁴Cm est aujourd'hui le principal émetteur neutronique d'un assemblage irradié. Mais dans le procédé de retraitement, le Curium avec les autres actinides mineurs (hors Plutonium et Uranium) est entraîné dans les jus de produits de fission et est vitrifié. Ainsi, les déchets de faibles et moyennes activités sont généralement plutonifères et sans Curium.

2.2.2 Les réactions nucléaires

Certains isotopes peuvent émettre des particules alpha. Les noyaux lourds sont généralement des émetteurs alpha tout en étant des candidats pour la fission spontanée. L'activité provenant de la fission spontanée ne dépasse jamais quelques pourcents par rapport à l'activité alpha. Or les émetteurs alpha sont généralement mélangés intimement avec des noyaux légers tels l'Oxygène et le Fluor. Ces noyaux peuvent donner lieu à la production de neutrons par l'intermédiaire des réactions de capture 2.1 et 2.2.



Ces réactions ne sont possibles que si la particule alpha dispose de suffisamment d'énergie pour franchir la barrière coulombienne. L'expression **2.3** donne l'énergie minimale dont doivent disposer les alpha pour pouvoir franchir cette barrière énergétique B en tenant compte du Z₂ et du A₂ du noyau cible. Les paramètres Z₁ et A₁ correspondent à la particule alpha. Les paramètres e et r₀ sont respectivement la charge de l'électron qui vaut -1,602.10⁻¹⁹C et le rayon qui vaut environ 1,2 fm.

¹²³⁸U + n → ²³⁹U → ²³⁹Np → ²³⁹Pu ce dernier est fissile spontanément.

$$B = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{4\pi\epsilon_0 r_0 \left(A_1^{\frac{1}{3}} + A_2^{\frac{1}{3}} \right)} \quad (2.3)$$

Les réactions (α, n) peuvent se produire dans les composés Uranium et Plutonium lorsqu'ils sont sous forme d'oxydes (PuO_2 , UO_2) ou de composés fluorés (UF_6). Les sources de neutrons courantes AmBe et AmLi sont basées sur ce même type de réaction entre émetteur alpha (à savoir l'Américium) et noyau cible léger (à savoir le Béryllium ou le Lithium).

Lorsque la particule incidente est un rayonnement gamma, cette réaction nucléaire est une photofission. Ce type de réaction permet ainsi de générer des neutrons en réalisant des réactions de type (γ, n) . Dans ce cas, l'énergie des gamma incidents est telle (le seuil énergétique se situe autour de 8 MeV) que le noyau qui absorbe le rayonnement ne dispose que de deux possibilités pour retourner dans un état énergétiquement compatible : soit fissionner (c'est la photofission, dans ce cas, outre les neutrons, des produits de fission sont également émis dans ce cas), soit émettre spontanément un ou plusieurs neutrons (il n'y a que des photoneutrons émis, le noyau ne se scinde pas en deux morceaux).

2.3 Réactions possibles pour la détection

Les neutrons sont des particules non chargées de masse égale à 939,55 MeV/c². Compte tenu de leur neutralité électrique, ils ne peuvent interagir avec la matière que par chocs élastiques, inélastiques ou par captures par les noyaux. La valeur de la section efficace permet de quantifier la probabilité d'interaction des neutrons en fonction de leur énergie et du type de noyaux présents dans la matière (l'unité utilisée est le barn qui équivaut à 10⁻²⁴ cm²).

Deux types principaux d'interaction peuvent avoir lieu entre les neutrons et la matière, à savoir les diffusions (le neutron existe encore après la réaction) et les absorptions (le neutron disparaît dans la réaction).

Les diffusions peuvent être de type :

- **Elastique** : les neutrons incidents et diffusés sont les mêmes, à la perte en énergie prêt ($n + A \rightarrow n + A$).
- **Inélastique** : le neutron incident disparaît dans le noyau cible et le neutron diffusé provient du capital de neutrons disponibles dans le noyau cible ($n + A \rightarrow n + A^*$).

Les absorptions peuvent conduire à la production :

- de particules **électromagnétiques** (réaction du type (n, γ))
- de particules **chargées** (électron, proton, deuton, alpha, etc.)
- de particules **neutres** (réaction de type $(n, 2n)$, $(n, 3n)$, etc.)
- de particules **chargées lourdes** comme les produits de fission (cas de la fission induite).

2.3. RÉACTIONS POSSIBLES POUR LA DÉTECTION

2.3.1 Les diffusions

Dans le cas des réactions de diffusion élastique, l'énergie cinétique totale du couple neutron incident et noyau cible reste inchangée avant et après la réaction. Pour un neutron d'énergie E , la perte d'énergie du neutron ΔE dans un matériau de nombre de masse A est donnée par la relation **2.4**. Il s'agit d'une valeur moyenne sur l'angle de diffusion du neutron émis.

$$\Delta E = \frac{2EA}{(A+1)^2} \quad (2.4)$$

Cette expression montre bien que pour ralentir les neutrons avec un "rendement" maximum (c'est à dire en un minimum de chocs), il faut un matériau dont le A soit le plus proche possible de celui du neutron (c'est à dire égal à 1). Ainsi, la perte moyenne d'énergie peut atteindre son maximum, à savoir $\frac{E}{2}$, lors de la première collision avec un noyau d'Hydrogène. L'énergie résiduelle d'un neutron après n collisions est donnée par l'expression **2.5**. Compte tenu de la structure nucléaire des noyaux d'Hydrogène, seules les diffusions élastiques peuvent avoir lieu. De part l'absence de charge électrique, la perte d'énergie des neutrons est liée à un processus statistique de collision ayant une certaine probabilité d'apparition dictée par les sections efficaces de réaction. Il faut environ 18 chocs sur des noyaux d'Hydrogène à un neutron pour passer de 2 MeV à 25 meV d'énergie cinétique.

$$E_n = E_0 \left(\frac{(A^2 + 1)}{(A + 1)^2} \right)^n \quad (2.5)$$

Des interactions avec des noyaux, tel le Carbone, peuvent être également envisagées. Cependant, la perte d'énergie est faible dans ces cas, à cause du trop grand écart entre le nombre de masse du Carbone et celui du neutron. Il faut donc nettement plus de chocs entre le neutron incident et la matière pour le ralentir.

La détection du neutron s'effectue dans le cas des diffusions par détection du noyau cible dit de recul. En effet, ce noyau est souvent chargé. La détection du neutron passe par la collecte, via un champ électrique et/ou magnétique adhoc, du ou des ions formés lors de l'interaction rayonnement neutronique - matière. Si l'appareillage permet de déterminer la distribution en énergie du ou des noyaux de recul, il est alors possible d'en déduire la distribution initiale en énergie du neutron incident. Il s'agit alors d'une mesure globale réalisée sur l'ensemble des chocs que réalise le neutron.

2.3.2 Les captures

Les probabilités de capture des neutrons par les noyaux dépendent, entre autre, de l'énergie du neutron. D'une façon générale, la probabilité de capture par les noyaux est d'autant plus élevée que la vitesse, donc l'énergie, du neutron est faible (Cf. figure **2.1**).

La liste suivante donne quelques exemples parmi les réactions les plus courantes pouvant être utilisées pour la détection des neutrons thermiques. Les neutrons sont dits thermiques lorsque leur vitesse est équivalente à celle qu'ils auraient grâce uniquement à l'agitation thermique ($E=kT$ où E est l'énergie de la particule en Joule, T la température en Kelvin et k la constante de Boltzman). Cette énergie vaut environ 25 meV à 25°C.

- $^3\text{He} + ^1_0\text{n} \longrightarrow ^3\text{H} + ^1_1\text{p} + 0,77 \text{ MeV}$
($\sigma_{\text{capture}} = 5327 \text{ barns}$)
- $^6\text{Li} + ^1_0\text{n} \longrightarrow ^3\text{H} + ^4\text{He} + 4,79 \text{ MeV}$
($\sigma_{\text{capture}} = 950 \text{ barns}$)
- $^{10}\text{B} + ^1_0\text{n} \longrightarrow ^7\text{Li}^* + ^4\text{He} + 2,30 \text{ MeV} \longrightarrow ^7\text{Li} + ^4\text{He} + \gamma (0,48 \text{ MeV})$
($\sigma_{\text{capture}} = 3840 \text{ barns}$)
- $^{155,157}\text{Gd} + ^1_0\text{n} \longrightarrow ^{156,158}\text{Gd}^* \longrightarrow ^{156,158}\text{Gd} + \gamma's + e^- (\text{C.E. } 80 \text{ keV}) (Q=7,9 \text{ MeV})$
(Pour les isotopes 155 et 157 σ_{capture} vaut, respectivement, 56000 barns et 242000 barns)
- $^{235}\text{U} + ^1_0\text{n} \longrightarrow \text{neutrons} + \text{fragments de fission} \pm 160 \text{ MeV}$
($\sigma_{\text{capture}} = 580 \text{ barns}$)

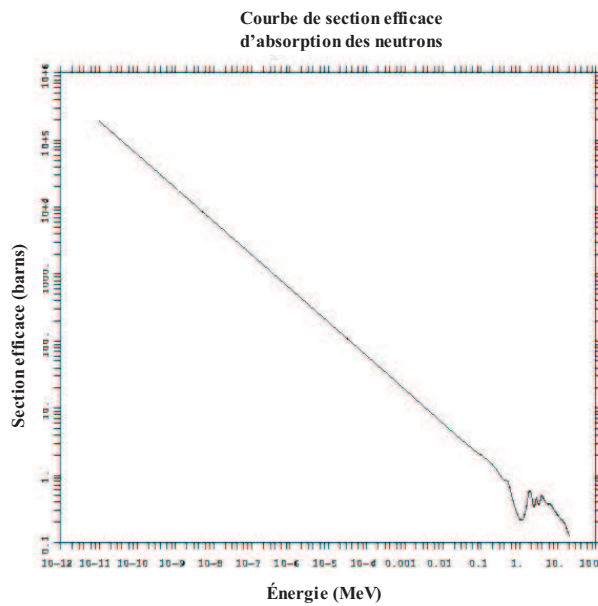


FIG. 2.1: Evolution de la section efficace de capture neutronique des noyaux de Bore 10 en fonction de l'énergie des neutrons incidents.

L'évolution de la probabilité d'interaction varie selon l'inverse de la vitesse. Il est donc préférable de ralentir les neutrons par des réactions élastiques (Cf. § précédent sur les diffusions) afin de maximiser l'efficacité de capture par le milieu détecteur.

Comme pour les réactions de diffusion, la détection finale des neutrons s'effectue par la détection des ions formés lors de la réaction de capture.

2.4 Les détecteurs existants

2.4.1 Les détecteurs à gaz

Ces détecteurs fonctionnent sur le principe d'un condensateur cylindrique dont l'espace compris entre l'anode et la cathode est rempli d'un gaz qui peut lui-même être sensible aux rayonnements à détecter. Afin de rendre ces détecteurs sensibles aux neutrons, il peut être envisagé de faire un dépôt de matériaux sensible aux neutrons thermiques (comme, par exemple, le Bore 10 ou l'Uranium 235) ou encore de les remplir avec un gaz sensible aux neutrons thermiques (comme le trifluorure de Bore, BF_3 ou l'Hélium 3).

Selon la configuration géométrique des électrodes, le type d'isolant utilisé et la différence de potentiel présente entre l'anode et la cathode du détecteur, celui-ci ne fonctionne pas sous le même régime. Pour ce qui concerne la détection neutronique, seuls deux fonctionnements sont applicables, à savoir le régime de fonctionnement en chambre d'ionisation et celui en compteur proportionnel. Les différentes zones de fonctionnement sont présentées sur la figure 2.2. Sur cette figure, les réponses observables pour des alpha et des bêta sont également comparées. La réponse due aux particules alpha est plus importante que celle due aux bêta en raison du fort pouvoir ionisant des particules alpha.

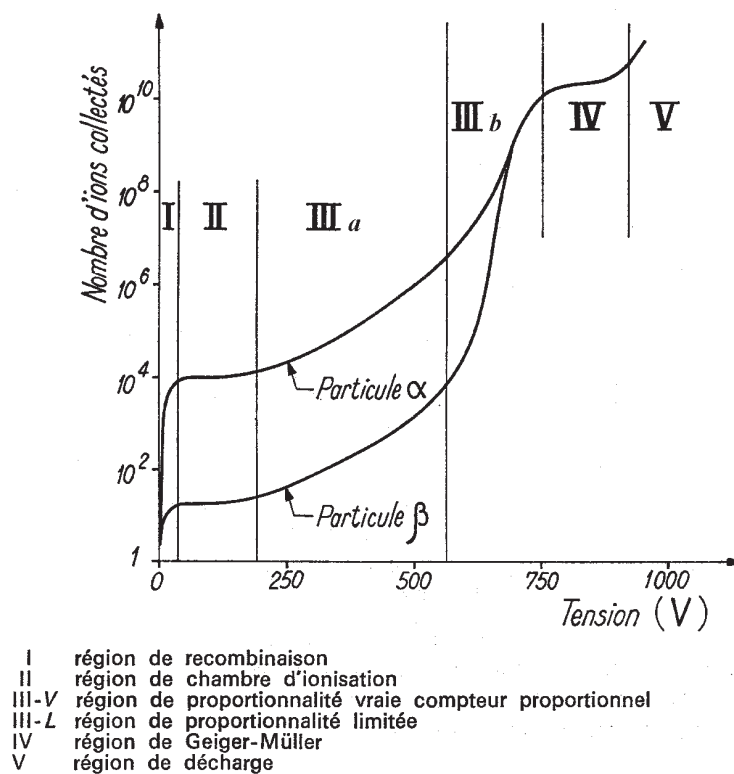


FIG. 2.2: Mode de fonctionnement des détecteurs à gaz en fonction de la tension appliquée aux bornes des électrodes.

- **Les compteurs proportionnels** fonctionnent selon le principe de l'avalanche de Townsend qui est localisée au volume de gaz près de l'anode. Elle est induite par le très fort champ électrique au voisinage de l'anode (de l'ordre de 10^6 V.m^{-1}). Ce champ électrique est d'autant plus fort que le diamètre de l'anode est faible (de l'ordre de $20 \mu\text{m}$) [Knoll 89]. En effet, le champ ϵ varie en fonction du rayon r comme $\epsilon(r) = \frac{V}{r \cdot \ln(\frac{b}{a})}$ où V est la tension appliquée entre l'anode et la cathode, a et b sont respectivement le rayon de l'anode et celui de la cathode.
La haute tension appliquée aux électrodes du compteur proportionnel permet une amplification physique des charges créées par l'interaction des ions générés lors de la capture du neutron par le matériau sensible. L'accélération des ions et des électrons, initialement générés, est suffisante pour qu'ils entraînent à leur tour une ionisation du gaz et ainsi la génération de charges. Ces dernières sont alors collectées pour former le signal final disponible. Ce mode de fonctionnement du détecteur permet donc d'amplifier le signal physique in situ.
- **La chambre d'ionisation** ne dispose pas d'une différence de potentielle entre les électrodes suffisante pour entraîner une avalanche dans le détecteur. Les charges créées par l'interaction des ions générés par la capture du neutron par le matériau sensible sont seulement collectées grâce au champ électrique. Aucune amplification n'est réalisée au sein même du détecteur.

Pour la détection neutronique, cinq types de détecteurs à gaz sont disponibles :

- les compteurs proportionnels à dépôt de Bore enrichi en isotope 10,
(ils ne peuvent fonctionner qu'en mode impulsionnel)
- les compteurs proportionnels à BF_3 ,
(ils ne peuvent fonctionner qu'en mode impulsionnel)
- les compteurs proportionnels à Hélium 3,
(ils ne peuvent fonctionner qu'en mode impulsionnel)
- les chambres d'ionisation à dépôt d'Uranium enrichi en ^{235}U ,
(elles peuvent fonctionner en mode impulsionnel, en mode fluctuation et en mode courant)
- les chambres d'ionisation à dépôt de Bore enrichi en isotope 10.
(elles peuvent fonctionner en mode courant)

Les compteurs proportionnels à dépôt de Bore ainsi que les compteurs proportionnels à BF_3 ou à ^3He sont utilisés dans les applications de contrôle des déchets. Ils sont également utilisés sur l'ensemble des Réacteurs à Eau Pressurisée (R.E.P.) français afin d'en assurer le pilotage au démarrage, appelé niveau de fonctionnement source.

2.4. LES DÉTECTEURS EXISTANTS

Les chambres d'ionisation à dépôt de Bore servent au pilotage des R.E.P. français pour un fonctionnement du niveau intermédiaire au niveau puissance (selon qu'elles soient ou non compensées vis à vis du rayonnement gamma).

Les chambres d'ionisation à dépôt d'Uranium sont utilisées dans les R.E.P. français afin de réaliser une cartographie du profil de flux neutronique du coeur. Elles sont également employées pour le pilotage des réacteurs expérimentaux et des réacteurs embarqués à bord des sous-marins à propulsion nucléaire.

Compte tenu de leur grande sensibilité et de leur endurance vis à vis du rayonnement gamma, les compteurs utilisés pour le contrôle des fûts de déchets radioactifs sont les compteurs à Hélium 3. Le mode de fonctionnement en compteur proportionnel est déterminé par la nécessité de réaliser une amplification du signal physique, puisque la quantité d'énergie disponible de la réaction de capture des neutrons thermiques par les noyaux d'Hélium 3 n'est pas suffisante pour induire un signal électrique exploitable par la chaîne de mesure. En effet, la réaction ne génère que 770 keV d'énergie qui sont partagés entre un proton et un ion Tritium.

Ces compteurs sont très sensibles aux neutrons thermiques. En effet, la section efficace de capture des neutrons thermiques par les noyaux d'Hélium 3 vaut 5327 barns. Leur pression de fonctionnement se situe entre 4 et 10 bars selon l'efficacité de détection requise par les applications. Eventuellement de l'Argon peut être ajouté à l'Hélium afin de diminuer l'effet de parois. Leur sensibilité varie entre 18 et 150 coups par seconde et par neutron émis par $\text{cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$, suivant leur géométrie, et leur branchement à un préamplificateur de charge déterminé. Ces sensibilités données par le constructeur doivent être relativisées. En effet, cette sensibilité théorique doit être divisée par 2 voire 3 selon l'environnement (géométrique et/ou radiologique) ou selon la chaîne électronique dans lesquels les détecteurs à Hélium 3 sont mis en oeuvre (préamplificateur de charge ou de courant). Compte tenu de leur structure ils peuvent fonctionner jusqu'à des débits de dose maxima de 100 mGy.h^{-1} .

Les méthodes de discrimination neutron - gamma pour ces détecteurs consistent à ajuster un seuil de discrimination, correspondant à une certaine amplitude du signal. Au dessus de ce seuil, l'ensemble des événements vus sont considérés comme étant des événements neutroniques, au dessous de ce seuil, l'ensemble des événements sont considérés comme étant des événements gamma à rejeter. Ainsi la discrimination neutron - gamma ne revêt pas d'analyse fine du signal comme cela peut être le cas pour les détecteurs à scintillation (Cf. chapitre 8 sur la discrimination de particules dans les scintillateurs plastiques dopés au Bore). Cependant, n'étant sensible qu'aux neutrons thermiques, ce type de détecteurs doit être placé dans une structure modératrice (généralement du polyéthylène) afin de thermaliser l'ensemble des neutrons arrivant sur le détecteur. Ce phénomène de thermalisation a lieu en dehors du détecteur ce qui a pour effet d'augmenter la durée de vie du neutron dans l'ensemble de détection. La différence de temps entre la première interaction du neutron dans le modérateur et la réaction de capture du neutron thermique par un noyau d'Hélium 3 est appelée durée de vie du neutron dans la cellule de détection. Cette durée de vie varie selon les configurations géométriques retenues et mises en oeuvre.

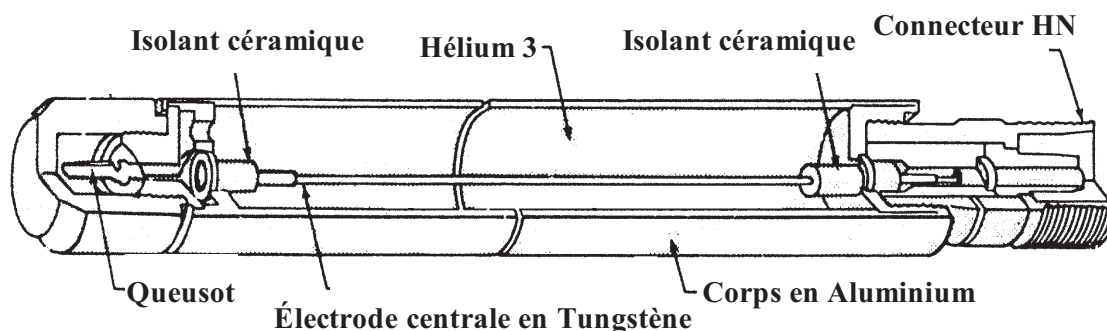


FIG. 2.3: Schéma d'un détecteur à gaz à Hélium 3 [Mech 73]

Elle se situe autour de $100 \mu\text{s}$ dans les cellules de mesure étudiées au cours de ces travaux.

Les détecteurs à Hélium 3 peuvent avoir des géométries cylindriques de grande longueur (jusqu'à 1 mètre de longueur sensible.) (Cf. figure **2.3**). Outre leur utilisation pour le contrôle des fûts de déchets, ils servent également à d'autres applications comme des mesures de taux d'humidité ou dans les chaînes de démarrage de certains réacteurs nucléaires expérimentaux.

2.4.2 Les détecteurs semi-conducteurs

Le principe de fonctionnement d'un détecteur semi-conducteur consiste en la génération de paires électrons - trous directement ou indirectement par le rayonnement nucléaire dans une zone particulière du détecteur. Cette zone se situe entre les deux électrodes. Elle est déplétée, c'est à dire qu'il n'y a plus de porteurs de charges disponibles. Elle permet, compte tenu des propriétés du matériau semi-conducteur intrinsèque ou extrinsèque, de disposer d'un fort champ électrique. Ce champ électrique permet la migration aisée des paires électrons - trous vers les électrodes afin de générer le signal électrique utilisable. Ce signal doit absolument être préamplifié le plus près possible du détecteur compte tenu de sa très faible amplitude.

Alors que pour un détecteur à base d'un semi-conducteur intrinsèque (comme le diamant), la zone déplétée est comprise entre les deux électrodes. Pour un semi-conducteur extrinsèque, le principe de fonctionnement est celui d'une diode, c'est à dire que la zone déplétée se situe au niveau d'une jonction PN. Selon le niveau de polarisation, la zone est plus ou moins déplétée. La zone sensible du détecteur est d'autant plus facilement déplétée que peu de porteurs sont disponibles. Le dopage augmente le nombre de porteurs disponibles et donc globalement la conductivité du semi-conducteur extrinsèque. Lorsqu'un rayonnement nucléaire interagit avec cette jonction, les paires électrons - trous ainsi formées sont rapidement collectées grâce au fort champ électrique qui y règne. De la tension appliquée dépend la vitesse de dérive des charges dans le détecteur et donc la

2.4. LES DÉTECTEURS EXISTANTS

capacité du détecteur à répondre de façon impulsionnelle à une sollicitation provenant d'un rayonnement nucléaire.

Ces détecteurs ne sont sensibles qu'aux particules susceptibles de générer une ionisation du milieu, ils ne sont donc sensibles qu'aux particules chargées. Ces particules chargées peuvent provenir du milieu extérieur ou être générées au sein même du détecteur suite à l'interaction entre la radiation incidente et les noyaux du milieu détecteur. La détection des rayons X ou du rayonnement gamma passe par la réalisation d'effet Compton, d'effet photoélectrique ou d'effet de création de paires sur les cortèges électroniques des noyaux constituant le matériau détecteur. Ce sont ces électrons ainsi générés qui ionisent le milieu et qui peuvent ensuite être détectés et générer le signal utile.

Pour rendre ce type de détecteur sensible à des particules neutres comme les neutrons, il faut utiliser un convertisseur qui transforme les neutrons en proton de recul ou en couples d'ions alpha et Lithium. Le convertisseur se place entre le faisceau de particules à détecter et la zone déplétée du détecteur semi-conducteur. Du choix du type de convertisseur et de son épaisseur dépend la sensibilité finale du détecteur à une certaine gamme d'énergie des neutrons incidents. Cependant, compte tenu du faible parcours des particules chargées dans les matériaux solides, la particule chargée doit être créée la plus proche possible de la zone déplétée où s'effectue réellement la détection du rayonnement ionisant. Ainsi l'épaisseur du convertisseur doit répondre au compromis entre une épaisseur suffisante pour avoir une efficacité de détection la meilleure possible et une épaisseur la plus faible possible pour que les ions (protons de recul, alpha, Lithium ou produits de fission) puissent sortir de cette couche et pénétrer dans la zone sensible du détecteur semi-conducteur.

Couramment, pour réaliser la détection des neutrons thermiques, des dépôts de Bore 10 ou de Lithium 6 sont réalisés directement sur la partie sensible du détecteur. Des dépôts à base d'Uranium 235 ont également été accomplis. Dans ce cas, ce sont les produits de fission qui sont détectés par une diode Silicium. Les épaisseurs de ces dépôts sont de l'ordre de 1 μm .

Les applications industrielles de ces détecteurs semi-conducteurs sont liées surtout aux besoins en dosimétrie neutron portable et personnelle [Aoyama 92], [Reft 88], [Petrillo 96] et [Petr 88].

2.4.3 Les scintillateurs

Ces matériaux ont la propriété d'émettre de la lumière lorsqu'ils sont soumis à un rayonnement nucléaire. Selon le type de liaisons chimiques et d'atomes qui les composent, ils sont classés en deux familles : les inorganiques (amorphes ou cristallins) et les organiques.

Ces deux types de détecteurs existent à l'état solide mais aussi à l'état liquide pour les scintillateurs organiques. La description du principe de leur fonctionnement et de leurs caractéristiques détaillées fera l'objet du chapitre 3.

Les inorganiques : Ce sont des solides largement utilisés en détection gamma pour deux raisons principales [Eijk 01].

- Ils ont une très bonne efficacité de détection des rayonnements grâce à leur forte densité. Leur Z élevé les rend particulièrement sensible à l'effet photoélectrique. Ils permettent ainsi de réaliser aisément de la spectrométrie gamma. Certains verres scintillants sont dopés au Lithium 6, isotope du lithium très sensible aux neutrons thermiques. Ils ne permettent donc de ne détecter que les neutrons thermiques.
- Ils peuvent avoir de gros volume de détection, pour ce qui concerne les scintillateurs sensibles aux rayonnements gamma.

Leur principal inconvénient est d'être hygroscopique pour nombre d'entre eux (comme, par exemple, l'iodure de Sodium dopé au Thallium ou NaI(Tl)). Il faut donc qu'ils soient conditionnés dans des containers spéciaux étanches à l'air mais ayant de bonnes propriétés de réflexion et de transmission de la lumière.

Pour la spectrométrie gamma, ce sont les scintillateurs inorganiques extrinsèques qui sont largement utilisés, comme le CsI(Tl) ou le NaI(Tl). Les scintillateurs intrinsèques comme le $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ sont utilisés en raison de leur forte sensibilité aux gamma (masse volumique de $7,13 \text{ g.cm}^{-3}$ à comparer à $3,67 \text{ g.cm}^{-3}$ pour le NaI(Tl) et à $4,51 \text{ g.cm}^{-3}$ pour le CsI(Tl)) et présence du Bismuth avec un $Z=83$. En revanche, leur résolution en énergie ne permet pas de réaliser des spectroscopies aussi fines qu'avec les scintillateurs de type NaI(Tl)².

La résolution en énergie des pics photoélectriques est typiquement de l'ordre de 5 %. La finesse de cette spectroscopie n'atteint cependant pas les performances obtenues avec des détecteurs semi-conducteurs à base de diode Germanium hyperpur (la résolution des pics photoélectriques est inférieure à 0,1 %). Les détecteurs à base de Germanium surclassent les scintillateurs inorganiques en terme de résolution. Les grands volume de détection sont difficilement accessibles en raison de leur coût de production important contrairement aux scintillateurs.

Compte tenu des faibles rendement lumineux obtenus avec les scintillateurs inorganiques dopés au Lithium [Czirr 99], [Ogorodnikov 99] (typiquement LiB_3O_5 ou $[\text{}^6\text{Li}_6\text{Gd}(\text{}^{11}\text{BO}_3)_3:\text{Ce}]$, la détection neutron utilise rarement ce type de détecteur seul. En effet, ce type de détecteur est utilisé en sandwich avec un modérateur afin d'augmenter leur sensibilité aux neutrons rapides [Mauquest 99]. Le milieu de thermalisation et le milieu de détection sont dissociés ce qui n'est pas le cas avec les scintillateurs plastiques dopés au Bore.

²Le rendement de scintillation est de :

38000 photons par MeV d'énergie déposée pour le NaI(Tl)
52000 photons par MeV d'énergie déposée pour le CsI(Tl)
8200 photons par MeV d'énergie déposée pour le BGO

2.4. LES DÉTECTEURS EXISTANTS

Les organiques : Ils existent sous l'état solide et liquide.

- Les scintillateurs solides sont aisément usinables. Ils s'adaptent donc facilement aux géométries des dispositifs de détection. Ils sont largement utilisés dans les portiques de détection au sein des installations nucléaires. En effet, leur forte efficacité de détection et leur géométrie façonnable à volonté en font des détecteurs de grandes surfaces bon marché. Leur inconvénient majeur est une perte de leurs propriétés optiques lors de leur vieillissement. Les plus utilisés et les plus connus de ces scintillateurs sont le NE102³ ou BC404 qui sont des produits disponibles auprès de Bicron, filiale du groupe Saint Gobain Verres et Cristaux. Ces scintillateurs sont constitués d'une base en polyvinyltoluène ou en polystyrène et de une ou deux autres molécules scintillantes.
- Les scintillateurs liquides sont largement utilisés lors d'expériences de physique nécessitant la détection de neutrons et la séparation du signal neutronique du bruit de fond (généralement gamma). En effet, ils permettent de réaliser aisément la discrimination de particules, contrairement aux scintillateurs solides où la séparation des signaux est plus délicate. Cependant, les composés utilisés pour scintiller, et notamment le solvant, ont généralement des points éclair⁴ bas. Aussi, les contraintes liées aux risques incendies peuvent être une limitation à l'utilisation de ce type de scintillateur en environnement industriel. Leur utilisation en container les rend fragiles face aux agressions provenant de l'environnement dans lequel ils sont mis en oeuvre. Par exemple, la présence d'oxygène dissout est très néfaste à la production de lumière, l'oxygène étant un "quencheur"⁵ très efficace (Cf. chapitre 4). Ainsi, ces scintillateurs doivent être dégazés et maintenus à l'abri de l'air ambiant.

Contrairement aux scintillateurs inorganiques, ces scintillateurs sont des composés fortement hydrogénés. Ils ne sont donc sensibles qu'aux neutrons rapides par l'intermédiaire de diffusions élastiques (n,n)⁶. De plus, si ces scintillateurs sont dopés soit au Bore soit au Gadolinium, ils deviennent également sensibles aux neutrons thermiques.

2.4.4 Comparaison des différents détecteurs disponibles

Une présentation des différents détecteurs neutroniques disponibles permet, dans le paragraphe suivant, de réaliser une comparaison en terme d'efficacité de détection et de domaines d'utilisation envisageables. Le tableau **2.1** compare l'efficacité de détection neutron et la tenue au rayonnement gamma pour divers types de détecteurs, il est extrait de l'ouvrage collectif dirigé par Reilly [Reilly 91].

³Nuclear Enterprise, entreprise ayant été rachetée par le Groupe Saint Gobain

⁴Noté PE, c'est la température minimale à laquelle il faut porter, dans les conditions normales de pression, un liquide pour que des vapeurs émises s'enflamment au contact d'une source d'ignition.

⁵Elément qui a la propriété de dégrader l'énergie des états d'excitation à vie longues (ou états triplets) sous forme non radiative.

⁶Par abus de langage, les diffusions (n,n) seront notées par la suite diffusions (n,p). Le proton est la particule permettant la détection indirecte du neutron.

Type de détecteur	Dimensions	Noyau	Energie	Efficacité	Tenue aux gamma
Scintillateur plastique	ép = 5 cm	^1H	1 MeV	78 %	$10^{-4} \text{ Gy.h}^{-1}$
Scintillateur liquide	ép = 5 cm	^1H	1 MeV	78 %	$10^{-3} \text{ Gy.h}^{-1}$
Scintillateur dopé (verre)	ép = 1 mm	^6Li	25 meV	50 %	$10^{-2} \text{ Gy.h}^{-1}$
^3He (4 atm), Ar (2 atm)	$\Phi = 2,5 \text{ cm}$	^3He	25 meV	77 %	$10^{-2} \text{ Gy.h}^{-1}$
^3He (4 atm), CO_2 (5%)	$\Phi = 2,5 \text{ cm}$	^3He	25 meV	77 %	$10^{-1} \text{ Gy.h}^{-1}$
BF_3 (1,18 atm)	$\Phi = 5 \text{ cm}$	^{10}B	25 meV	46 %	$10^{-1} \text{ Gy.h}^{-1}$
Détecteur à dépôt de ^{10}B	$0,2 \text{ mg.cm}^{-2}$	^{10}B	25 meV	10 %	10 Gy.h^{-1}
Chambre à fission	$2 \text{ mg} \cdot \text{cm}^{-2}$	^{235}U	25 meV	0,5 %	$10^4 - 10^5 \text{ Gy.h}^{-1}$

Tableau 2.1: Comparaison des différents détecteurs neutroniques disponibles

L'environnement gamma de l'application visée pour la détection neutron est un facteur important dans le choix du détecteur. La forte efficacité de détection des neutrons pour les scintillateurs organiques s'accompagne, également, d'une très forte sensibilité aux gamma (Cf. chapitre 8). Il faut tenir compte également du vieillissement sous flux gamma des scintillateurs. Dans une application industrielle, les modifications de propagation de la lumière et la baisse du rendement de luminescence doivent être considérées comme des paramètres importants.

2.5 Applications de la détection neutronique

2.5.1 Contrôle - Commande des réacteurs

Les détecteurs utilisés pour le contrôle - commande doivent répondre au double objectif d'assurer le fonctionnement du réacteur et d'assurer la sécurité du réacteur et de son environnement en évitant toute dérive accidentelle.

L'instrumentation nécessaire pour le contrôle - commande des réacteurs se situe ex-core, c'est à dire en dehors du coeur. Les conditions environnementales ex-core sont les suivantes :

- Flux neutronique de l'ordre de $10^{10} \text{ n.s}^{-1}.\text{cm}^{-2}$
(à comparer aux $10^{14} \text{ n.s}^{-1}.\text{cm}^{-2}$ présents dans le coeur).
- Débit de fluence gamma de l'ordre de 10^3 à $10^4 \text{ Gy.s}^{-1}.\text{cm}^{-2}$
(à comparer aux 10^7 Gy.h^{-1} présents dans le coeur)
- Température autour de 80 à 100°C
(à comparer aux 320°C présents dans le coeur)

A la lumière de ces valeurs, il apparaît évident que les détecteurs utilisés doivent être robustes vis à vis du rayonnement gamma et permettre de donner des informations fiables sur le rayonnement neutronique présent (image du fonctionnement du coeur) malgré les conditions environnementales sévères. Ils sont caractérisés par une dynamique de

2.5. APPLICATIONS DE LA DÉTECTION NEUTRONIQUE

mesure très large puisqu'ils doivent pouvoir suivre l'activité du réacteur depuis le niveau démarrage (ou niveau source) jusqu'au niveau puissance. Les différents niveaux de fonctionnement d'un réacteur sont :

- **Phase de démarrage** : de 10^{-9} à 10^{-3} % de la Puissance Nominale du réacteur (P.N.) ce qui correspond à un flux neutronique compris entre 10^{-1} et 10^5 $\text{n.s}^{-1}.\text{cm}^{-2}$. Les détecteurs utilisés sont des compteurs proportionnels à dépôts de Bore pour les R.E.P. français et des compteurs proportionnels à BF_3 pour les R.E.P. américains.
- **Régime intermédiaire** : de 10^{-6} à 100 % de la P.N. ce qui correspond à un flux neutronique compris entre 10^2 et 10^{10} $\text{n.s}^{-1}.\text{cm}^{-2}$. Les détecteurs utilisés sont, pour les R.E.P. français et américains, des chambres d'ionisation à dépôt de Bore compensées vis à vis du rayonnement gamma. En effet, les gamma proviennent des réactions de fission mais peuvent aussi provenir dans certains cas des décroissances radioactives des produits de fission générés qui ne sont pas représentatifs de la puissance effective du réacteur. Les conditions radiologiques dépendent de l'âge du combustible constituant le coeur et de son histoire, c'est à dire de son taux d'utilisation. Ces chambres fonctionnent en mode courant et non en mode impulsion comme les compteurs.
- **Régime de puissance** : de 10^{-1} à 2.10^2 % de la P.N., ce qui correspond à un flux neutronique compris entre 10^7 et 2.10^{10} $\text{n.s}^{-1}.\text{cm}^{-2}$. Les détecteurs utilisés sont des chambres d'ionisation à dépôt de Bore. Compte tenu du fait que les gamma détectés sont ici très majoritairement une image des réactions de fission au même titre que les neutrons, il n'y a plus besoin de compenser le détecteur vis à vis du rayonnement gamma.

Les détecteurs neutroniques présents pour le contrôle - commande des réacteurs permettent, malgré des conditions de fonctionnement très sévères, d'assurer les paramètres de sécurité et de marche optimaux.

2.5.2 Les ateliers de mesures neutrons de COGEMA la Hague

La mesure neutronique est très importante pour l'exploitant nucléaire puisqu'elle permet de réaliser le contrôle du procédé de retraitement. Sur les sites de production de la COGEMA, plusieurs ateliers disposent de mesures neutroniques passives ou actives. A titre d'exemples, trois ateliers sont présentés ici

Le premier se situe en début de cycle. Le second est placé en fin de cycle. Le troisième est en fin de cycle parallèle, puisqu'il conditionne les déchets générés par l'exploitant lui-même lors du fonctionnement des installations.

- 1 - Dès leur arrivée en provenance des centrales, les assemblages combustibles subissent un contrôle de "Burn - Up" (contrôle du taux de combustion) qui est, entre autres, une mesure globale de l'activité neutronique et une spectrométrie gamma à l'aide d'un cristal de Germanium hyperpur. De l'ensemble de ces mesures, l'exploitant en

déduit notamment la possibilité ou non d'alléger les contraintes concernant la criticité durant le traitement de cet assemblage. Des postes d'analyse réalisent également des mesures de neutrons totaux tout au long du procédé. Le but est d'assurer, à tous les stades du procédé de retraitement, la sécurité vis à vis du risque d'incidents de criticité. L'essentiel de l'activité neutron des déchets provient du Curium dont la concentration dans le combustible à retraiter est d'autant plus grande que le taux de combustion est important.

- 2 - L'Atelier de Compactage des Coques et embouts (A.C.C.) intervient, quant à lui, en fin de traitement, au stade où la gaine a été séparée du combustible utilisé. Cet atelier réalise alors le compactage, par une presse, des gaines cisailées rincées et des embouts. Une mesure par spectrométrie gamma est réalisée afin de mesurer le ^{134}Cs , le ^{137}Cs et l' ^{154}Eu (détermination de l'activité bêta). Une mesure neutronique passive permet également de déterminer les quantités de Curium et de ^{240}Pu présentes. Une mesure neutronique active donne finalement la quantité de ^{239}Pu , de ^{241}Pu et de ^{235}U grâce aux neutrons prompts et la quantité de ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu et ^{235}Pu grâce aux neutrons retardés. L'activité alpha est déduites des différentes contributions du Curium, de l'Uranium et du Plutonium. Une mesure de l'activité totale neutron est réalisée dans cet atelier en fin de procédé, avant entreposage des fûts. L'essentiel de l'activité de ces fûts provient de produits de fission incrustés dans les assemblages et qui n'ont pas été dissouts lors du procédé de retraitement.
- 3 - L'exploitation d'une usine de retraitement induit la production de déchets dits technologiques qu'il convient au même titre que les autres de conditionner correctement pour un stockage adéquat. Cette activité est réalisée à l'usine COGEMA de la Hague au sein de l'Atelier Déchets n°2 (A.D.2). Dans cet atelier, seuls trois postes de mesures mettent en oeuvre une mesure de multiplicité neutronique. Ce type de mesure permet de séparer la contribution, à l'activité neutronique, des réactions de fission spontanée par rapport aux réactions de type (α, n) (Cf. chapitre 9). En effet, la majorité des composés présents dans les déchets sont des émetteurs alpha. Or des éléments légers sont également présents dans les fûts de déchets technologiques sous forme de film de polyéthylène, de polypropylène ou encore de filtres en cellulose. Ainsi, des réactions de type (α, n) peuvent avoir lieu. Ces neutrons, ainsi émis, donnent une contribution à l'activité totale neutronique mais ne donnent aucune information sur la quantité de matières fissiles résiduelles présentes dans les fûts de déchets. L'atelier A.D.2 traite uniquement les fûts de déchets technologiques de 120 litres. L'activité radiologique de ces fûts ne doit pas faire plus de 2 mSv.h^{-1} pour qu'ils soient acceptés. Une fois traités et mesurés, ils sont coulés dans une coque en béton.

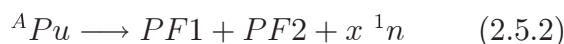
Les cellules de mesure neutronique couvrent au mieux les 4π d'angle solide par des structures en polyéthylène dans lesquelles sont insérés des détecteurs à Hélium 3. L'objectif est d'avoir une efficacité géométrique la plus élevée possible. Le nombre de détecteurs à

2.5. APPLICATIONS DE LA DÉTECTION NEUTRONIQUE

gaz à base d'Hélium 3 présents sur l'atelier A.C.C. est de l'ordre de 250, alors qu'il n'est que de 44 pour l'atelier A.D.2 poste 6 et de 36 pour l'atelier A.D.2 poste 16.

Pour les dispositifs de mesure de multiplicité neutron, la limite de détection est dans les meilleurs cas de 0,7 à 0,8 mg de Plutonium équivalent R.E.P.⁷. Le poste 6 sature à partir de 1 g de Plutonium équivalent R.E.P. du fait de l'électronique utilisant des pré-amplificateurs de charge. Le poste 16 permet de mesurer jusqu'à quelques centaines de gramme de Plutonium équivalent R.E.P. grâce à l'utilisation de pré-amplificateurs de courant.

La durée de vie du neutron dans ce type de cellule de mesure est de l'ordre de 100 μ s. De plus, l'efficacité totale ne dépasse pas 30 à 32 % en mesure totale et tombe à 10 % en mesures coïncidentes. Or, pour mesurer les multiplicités neutroniques (c'est à dire pour évaluer la quantité d'actinides résiduelle), il est nécessaire d'avoir à la fois une efficacité de détection élevée mais également une durée de vie du neutron la plus faible possible. En effet, la mesure des multiplicités impose la mise en coïncidence temporelle des événements mesurés, puisqu'il s'agit de mesurer les neutrons provenant de la même réaction de fission spontanée, à savoir x dans l'équation 2.5.2. Les produits de fission PF1 et PF2 n'ont pas un parcours suffisant pour être détectés car ils sont fortement ionisants.



Le nombre de neutrons, x , émis lors d'une réaction de fission spontanée du Plutonium, dépend de la composition isotopique en Plutonium du fût de déchets analysé. Il constitue la multiplicité de la réaction de fission.

2.5.3 Radioprotection - Contrôle de la matière fissile

La détection des neutrons revêt un caractère important pour la protection du personnel travaillant dans l'industrie nucléaire. De la même manière que les neutrons peuvent interagir avec les détecteurs, ils peuvent causer des dégâts aux cellules des êtres vivants. Etre en mesure d'indiquer la présence ou l'absence de rayonnement neutronique est donc très important pour le personnel intervenant en présence d'émetteurs neutroniques.

En cas d'irradiation accidentelle ou périodique, il faut être en mesure d'assurer une évaluation de la dose reçue par le personnel ou le public. C'est le rôle joué par les dosimètres personnels ou d'ambiance. Cette catégorie de détecteur doit assurer, aussi fidèlement que possible, un résultat dosimétrique pour le rayonnement neutronique tout en étant équivalent aux tissus humains.

⁷Pour un combustible R.E.P. standard brûlé à 30000 MW.jour/tonne, la composition isotopique du Pu est la suivante :

1,3 % de ${}^{238}\text{Pu}(+)$ 7-8 % de ${}^{242}\text{Pu}(+)$ 8-10 % de ${}^{241}\text{Pu}$ 20 % de ${}^{240}\text{Pu}(+)$ 60 % de ${}^{239}\text{Pu}$

Si le combustible a été utilisé plus que le niveau standard (plus de 30000 MW.jour/tonne, jusqu'à 45000 MW.jour/tonne pour les combustibles les plus récents), alors la proportion des isotopes marqués avec une croix (+) est augmentée au détriment des autres. Tous ces isotopes sont fissiles avec des multiplicités différentes qu'il convient de connaître (Cf. chapitre 7 concernant l'étude des multiplicités neutroniques).

La circulation des matières nucléaires est très réglementée. Malgré toutes les précautions mises en oeuvre, un trafic des matières fissiles se développe. Outre la dangerosité de ce type de matériau, il est clair qu'ils peuvent également permettre la réalisation de dispositifs de destruction massive. C'est le rôle d'agences internationales telle l'AIEA (Atomic International Energy Agency) de contrôler la non prolifération des matières et des armes nucléaires. Ces matières étant des émetteurs neutroniques, les agences de contrôle doivent donc disposer d'appareils de mesure capables de déterminer si un colis suspect contient ou non des matières émettant des neutrons.

2.5.4 Motivations et objectifs de la thèse

Comme présentée précédemment, la mesure neutronique des colis de déchets faiblement actif ou très faiblement actifs utilise des détecteurs à Hélium 3 entourés d'une matrice de polyéthylène afin de thermaliser l'ensemble des neutrons incidents.

Les deux inconvénients majeurs de ce type de cellule de détection sont

- une perte de comptage due à la diffusion des neutrons dans la masse du thermaliseur qui finalement ne rencontrent pas de milieu détecteur,
- la durée de vie du neutron est importante à cause de la séparation entre le milieu détecteur et le milieu thermaliseur.

L'objet de ce travail est d'étudier la possibilité de détecter des neutrons (rapides et thermiques) grâce à l'utilisation de scintillateur plastique dopé au Bore. Plusieurs axes de recherches ont été identifiés :

- L'**efficacité de détection** en neutrons thermiques est susceptible d'être améliorée par rapport aux détecteurs à base d'Hélium 3. En effet, la densité en noyaux cibles tant pour la thermalisation que pour la capture est plus importante que pour un détecteur à gaz à base d'Hélium 3.
- Le milieu détecteur étant intimement mêlé au milieu thermaliseur, la **durée de vie du neutron** doit être plus faible que pour les systèmes à base de structure en polyéthylène et de détecteurs à Hélium 3. Dès qu'un neutron est thermalisé, il n'a pas à parcourir une grande distance avant de rencontrer un noyau de Bore 10 contrairement aux structures à base de polyéthylène et de détecteurs à base d'Hélium 3, où une fois thermalisé, le neutron doit sortir de la structure thermalisatrice pour atteindre le détecteur à Hélium 3.
- Les mesures des **multiplicités neutroniques** s'en trouvent facilitées. Pour cela, il est nécessaire d'avoir des cellules de mesure avec une durée de vie du neutron la plus faible possible. En effet, cette mesure temporelle implique la réalisation de coïncidences dont la largeur des portes temporelles est directement liée à la durée de vie du neutron dans l'ensemble de détection. Or plus ces portes temporelles sont larges, plus la probabilité d'événements fortuits est importante. Il faut donc limiter

2.5. APPLICATIONS DE LA DÉTECTION NEUTRONIQUE

la largeur de ces portes temporelles au strict minimum requis, à savoir la durée de vie d'un neutron dans la cellule de mesure.

- Compte tenu de ces avantages, l'objectif final est d'améliorer la **détection des actinides** et de diminuer le seuil de détection de ces matières.
- A cause de la sensibilité de ces scintillateurs aux rayonnements gamma, il faut envisager le développement et la mise en oeuvre de méthodes de discrimination neutron - gamma avancées.

Chapitre 3

Les scintillateurs

3.1 Généralités

Il existe deux familles de scintillateurs, les organiques (avec des liaisons covalentes entre essentiellement des atomes de Carbone et des atomes d'Hydrogène) et les inorganiques (avec essentiellement des liaisons ioniques entre atomes).

3.1.1 Loi de Stokes

La loi de Stokes décrit le décalage énergétique entre les bandes d'absorption et d'émission d'un composé. L'approximation classiquement admise pour le décalage de Stokes correspond à $\lambda_{Stokes} = \frac{\lambda_1 - \lambda_2}{2}$. Il est explicité sur la figure 3.1.

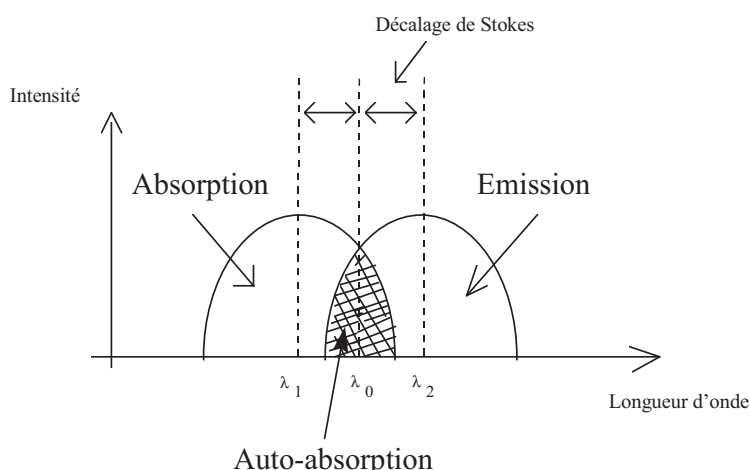


FIG. 3.1: Décalage de Stokes.

Les pertes par voie thermique d'une fraction de l'énergie d'excitation sont à l'origine du décalage de Stokes [Puertolas 91] et [Destrueel 89]. En augmentant le décalage de Stokes

d'un composé, la séparation entre les pics d'absorption et d'émission est accentuée. Le rendement quantique global de la molécule est donc amélioré.

3.1.2 Scintillateurs inorganiques

Méthodes d'obtention

Ces scintillateurs sont des cristaux obtenus par les deux méthodes classiques de pousse cristalline à savoir, la technique dite Bridgman et celle dite de Czochralski. Ces deux méthodes imposent au matériau d'être en fusion congruente, c'est à dire que la phase solide et la phase liquide doivent avoir la même composition. La qualité et l'orientation cristalline du germe initiateur sont à la base de la croissance pour la méthode de Czochralski. Avec la méthode de Bridgman, la croissance cristalline peut se produire en présence ou en l'absence de germe initiateur. Cependant, un germe doit tout de même être utilisé lors d'une croissance cristalline utilisant la méthode de Bridgman si l'orientation du cristal est importante pour son utilisation finale.

Avec la méthode de Czochralski, le cristal pousse sur une surface libre et a une géométrie circulaire ou facettée selon la direction du tirage et la symétrie cristalline du matériau. Pour la méthode de Bridgman, le cristal pousse en contact avec les parois du creuset et a donc, au final, la forme de ce creuset. Dans l'une et l'autre méthode, l'utilisation d'un germe est également garante d'une bonne répétabilité des performances des scintillateurs.

Le principal inconvénient de ces scintillateurs inorganiques, qui sont dédiés à la détection neutronique, est la difficulté à faire croître des cristaux de grandes dimensions pour un coût non prohibitif. De plus, lorsqu'un neutron interagit avec ce type de matériaux, il crée des lacunes. Lors d'irradiations à fortes doses, les processus de récupération de ces matériaux sont plus limités que pour les scintillateurs organiques. Ils se dégradent en perdant, progressivement, leurs propriétés optiques de transparence et leur efficacité de luminescence. Par contre, pour la détection des rayonnements gamma, les scintillateurs inorganiques utilisés peuvent avoir des dimensions importantes comme c'est le cas des cristaux de NaI(Tl). De plus, l'interaction rayonnement - matière n'entraîne que des mouvements d'électrons, ce qui limite la dégradation du cristal sous flux gamma par rapport à un flux neutronique.

Les matériaux utilisés comme scintillateurs

Ces scintillateurs cristallins existent sous deux familles, les scintillateurs intrinsèques (typiquement le $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$) et les scintillateurs extrinsèques (typiquement le NaI(Tl), iodure de Sodium dopé au Thallium). Bien que beaucoup de scintillateurs intrinsèques puissent être utilisés tels quels (comme, par exemple, le $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ qui possède une très bonne transparence à sa propre longueur d'onde d'émission), ils sont souvent dopés et forment alors des scintillateurs extrinsèques. En effet, ces dopants, ou centres d'activation, permettent de modifier la longueur d'onde d'émission des photons de scintillation et donc

3.1. GÉNÉRALITÉS

permettent de diminuer les problèmes d'autoabsorption qui limitent la propagation de la lumière dans les scintillateurs intrinsèques.

Excepté le $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, beaucoup de scintillateurs inorganiques sont hygroscopiques. Ils sont sensibles à l'humidité principalement à cause de leurs structures cristallines mettant en relation des ions entre eux (typiquement le NaI ou le CsI). Or l'eau a un fort coefficient de dispersion, caractérisant sa grande capacité à dissoudre les structures cristallines basées sur l'assemblage d'ions entre eux. Dès que l'eau entre en contact avec ces structures, elle les détruit.

Plus récemment de nouveaux types de verres sont apparus pour la détection gamma, typiquement le $\text{LiYSiO}_4:\text{Ce}^{3+}$ et le $\text{LiLuSiO}_4:\text{Ce}^{3+}$. Ces cristaux sont un peu particuliers puisque, contrairement au NaI(Tl), ce sont des matrices de composés avec des liaisons essentiellement covalentes. Certaines liaisons, comme Y-O et Li-O ont néanmoins un caractère plus ionique. Si le dopage en Cérium dépasse 1 %, alors il convient de parler de composés en solutions solides et non plus de composés matriciels.

D'autres verres ont été développés pour la détection de neutrons thermiques, ce sont principalement des verres dopés avec du Lithium 6 [Eijk 01] (ce sont des mélanges du type $(\text{SiO}_2)_{0,56}(\text{MgO})_{0,04}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{0,18}({}^6\text{LiO}_2)_{0,18}$) ou des scintillateurs extrinsèques du type LiI(Eu). D'autres cristaux ont également été fabriqués à base de Gadolinium du type $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ ou des orthosilicates dopés au Cérium de type GSO de formule chimique $(\text{Gd}_2\text{SiO}_5:\text{Ce})$ [Reeder 94].

La scintillation dans les matériaux inorganiques

Le processus de génération de lumière dans les scintillateurs inorganiques est complètement différent de celui mis en oeuvre dans leurs homologues organiques. Globalement, l'excitation du réseau cristallin (sous forme d'ionisation, d'excitons ou de phonons) entraîne la génération de photons au niveau de centres permettant la recombinaison d'électrons et de trous, selon les mêmes principes mis en oeuvre pour les détecteurs à base de semi-conducteurs (Cf. figure 3.2). La présence dans le gap de niveaux énergétiques supplémentaires, dus à la présence d'atomes de dopants ou centres activateurs, entraîne une diminution de l'énergie des photons émis, ce qui a pour effet d'augmenter leur longueur d'onde. Etant loin de la zone d'absorption propre du matériau scintillant, les photons ainsi ré-émis ont un libre parcours moyen plus importants dans le matériaux que s'il n'y avait pas ces atomes activateurs.

Les électrons et les trous générés respectivement dans la bande de conduction et la bande de valence peuvent se déplacer indépendamment les uns des autres, ce qui n'est pas le cas pour les excitons¹ où l'électron et le trou apparié se déplacent ensemble.

¹Un exciton est une paire électron-trou qui se comporte comme une excitation atomique se propageant de proche en proche au sein d'un semi-conducteur.

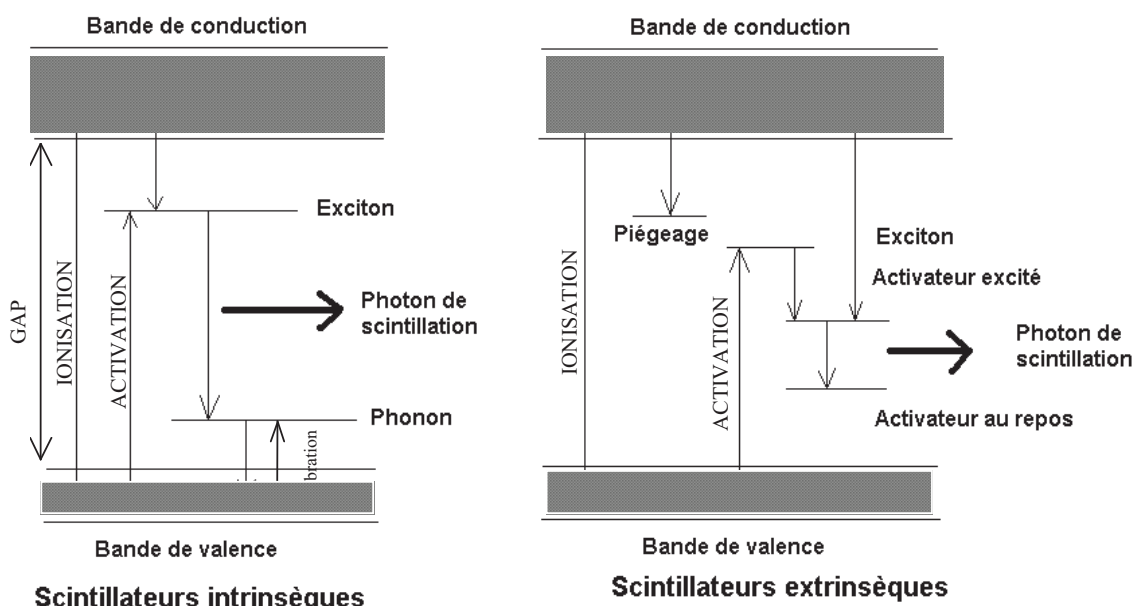


FIG. 3.2: Schéma des niveaux énergétiques pour les deux types de scintillateurs inorganiques

Applications et caractéristiques physiques

Leurs caractéristiques physiques et optiques sont les suivantes. Typiquement, les indices optiques de ces scintillateurs s'étalent de 1,44 pour le $\text{CaF}_2(\text{Eu})$ à 2,15 pour le $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$. Leurs longueurs d'onde d'émission du pic central varient de 310 nm pour le BaF_2 à 565 nm pour le $\text{CsI}(\text{Tl})$. Leur masse volumique est comprise entre $3,15 \text{ g.cm}^{-3}$ pour le $\text{CaF}_2(\text{Eu})$ à $7,13 \text{ g.cm}^{-3}$ pour le $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$. Ces scintillateurs sont donc particulièrement intéressants pour la détection gamma. Par contre, leurs constantes de décroissance de l'intensité lumineuse varient de quelques centaines de ns à plusieurs ms (la phosphorescence du $\text{NaI}(\text{Tl})$ se situe à 99 ms). Ce paramètre temporel peut être gênant lors de fort taux de comptage, le compteur étant alors facilement paralysable.

La détection des rayonnements gamma représente la principale utilisation des scintillateurs à base de $\text{NaI}(\text{Tl})$, $\text{CsI}(\text{Tl})$ ou de $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ dans certaines chaînes de spectrométrie gamma grossière (compte tenu de la faible résolution de ce type de détecteur en comparaison avec celle obtenue par des détecteurs à base de diodes Germanium hyper pur (HPGe) ou de chambres d'ionisation à Xénon fortement comprimé).

Compte tenu de leurs propriétés de détection gamma, cette famille de scintillateurs est très utilisée dans les applications d'imagerie médicale. Par contre pour les applications liées à la détections des neutrons, les scintillateurs inorganiques sont limités à la détection de neutrons thermiques (comme le sont les détecteurs à base d'Hélium 3), s'ils ont été préalablement dopés avec un composé sensible aux neutrons thermiques, comme, par

3.1. GÉNÉRALITÉS

exemple, le Lithium 6. En effet, leur structure ne leur permet pas d'être sensible aux neutrons rapides de façon satisfaisante pour être exploitable par un dispositif de détection.

3.1.3 Scintillateurs organiques

Ces scintillateurs n'ont pas de structure cristalline contrairement aux scintillateurs inorganiques. Ils peuvent se présenter sous forme solide ou liquide. Dans le cas des solides, leur structure est celle d'un polymère présentant de longues chaînes carbonées. Ces scintillateurs plastiques sont utilisés pour la détection de neutrons rapides, compte tenu de leur forte teneur en Hydrogène. Mais ils sont également utilisés pour la détection gamma afin de réaliser de la spectrométrie grossière appelée spectroscopie Compton puisque basée sur le front Compton du rayonnement détecté et non sur le pic photoélectrique (la probabilité qu'un gamma fasse un effet photoélectrique est faible). Le processus de génération de lumière est expliqué de façon détaillée dans le § 3.3. Il ne diffère quasiment pas pour les liquides et les solides, à ceci prêt que les proches voisins d'un atome ne sont jamais les mêmes pour un liquide alors que pour un solide, la structure du polymère n'évolue pas sauf suite à une réaction nucléaire où il y a disparition ou mouvement du noyau cible.

Les scintillateurs liquides sont plus simples à développer et à doper. Ils sont réalisés par des solutions, généralement à base de toluène, dans lesquelles les molécules scintillantes ont été dissoutes. Leur principal inconvénient est d'être facilement inflammable, ce qui les écarte de la plupart des applications industrielles, compte tenu des contraintes de charge au feu imposées par la sécurité. Leur point éclair est, en effet, très bas (inférieur à 10°C pour la plupart). A contrario, les solides ne sont pas explosifs et disposent de propriétés mécaniques qui les rendent facilement usinables. Cependant leurs performances de génération de lumière sont bien inférieures à celle des liquides.

Un milieu riche en Hydrogène (comme c'est le cas pour les scintillateurs plastiques) possède une forte probabilité d'interaction aux neutrons rapides. En effet, la cinématique est favorable à un transfert maximal d'énergie lorsque le neutron choque un proton, en raison de leur masse proche. Le dopage au Bore permet également de rendre les scintillateurs plastiques sensibles aux neutrons thermiques. Dès lors le scintillateur détecte les neutrons rapides au travers des diffusions élastiques (n,p) sur l'Hydrogène et les neutrons thermiques² et épithermiques³ au travers des réactions nucléaires (n, α) sur le Bore.

Les études les plus récentes ont été conduites sur ces scintillateurs plastiques dopés au Bore par le laboratoire de Los Alamos aux Etats-Unis [Miller 98], [Byrd 94], [Feldman 95], [Byrd 92]. Les scintillateurs plastiques dopés au Bore ont été utilisés par ce laboratoire afin de réaliser des spectromètres à neutrons employant la double propriété de détection des neutrons rapides (par les diffusions de type élastique (n,p) sur les noyaux d'hydrogène du plastique) et thermiques (par les réactions (n, α) de capture des neutrons thermiques par les noyaux de Bore 10). Leur dispositif de détection permettait en outre de réaliser une

²25 meV

³Neutrons dont l'énergie est comprise entre 10 eV et 20 keV

localisation spatiale du lieu d'émission des neutrons rapides par l'utilisation simultanée de quatre détecteurs associés à une électronique de gestion du positionnement. Cette instrumentation a été embarquée à bord de satellite permettant ainsi de faire une cartographie neutronique d'une partie de l'espace. Moyennant quelques aménagements (notamment l'adjonction d'un dispositif de déplacement robotisé), ce type de détecteurs de neutrons à localisation a également été utilisé pour le contrôle des puits de missiles et d'une façon générale pour le contrôle de non prolifération des armes nucléaires. Dans ces applications, ces scintillateurs sont utilisés comme "Black Neutron Detector" [Drake 86], c'est à dire comme absorbeur total de neutrons.

Une étude plus théorique [Kamykowski 92], [Kamykowski 90] a permis de confirmer la validité du code de calcul MCNP (Monte Carlo N-Particles [Briesmeister 97]) pour simuler le comportement neutronique (efficacité de détection globale et durée de vie du neutron) pour ce type de scintillateur plastique dopé au Bore. Cette étude portait sur la comparaison de la réponse spectrale simulée et mesurée ainsi que l'efficacité intrinsèque de scintillateur plastique dopé au Bore. L'objectif était de réaliser un spectromètre utilisant ce type de scintillateur afin d'exploiter la double sensibilité à la fois aux neutrons rapides et aux neutron thermiques.

Seule la société Bicron [Laboratories 84], située à Newbury dans l'Ohio aux Etats-Unis, est capable de fournir le marché mondial pour ce type de scintillateur. A titre d'information, le coût d'un scintillateur cylindrique de 15 cm de long et de 40 mm de diamètre est typiquement de 45 kF soit 6,86 kEuro. C'est une des raisons qui nous a conduit à développer et fabriquer au sein de notre laboratoire un scintillateur plastique dopé au Bore. Une synthèse possible des scintillateurs plastiques dopés au Bore avait d'ailleurs été décrite par Anisimova [Anisimova 69] à la fin des années 60.

3.2 Caractéristiques des scintillateurs organiques solides

Les phénomènes de fluorescence retardée et de phosphorescence sont particulièrement remarquables par le fait que, suite à une illumination, le produit, même dans l'obscurité, continue de ré-émettre de la lumière. L'utilisation de ces matériaux en tant que détecteur nucléaire est la plus répandue. Ainsi, Kallmann et Broser [Kallmann 47] ont découvert en 1947 et utilisé la propriété d'émission de lumière de ces matériaux, tel l'anthracène, lorsqu'ils sont soumis à des rayonnements nucléaires. Ainsi, même le polystyrène émet une lumière dans le lointain ultra violet lorsqu'une particule ionisante le traverse. Cependant les rendements de fluorescence pour le polystyrène sont très faibles, ce qui fait qu'il n'est utilisé que comme solvant dans les composés scintillants.

Les phénomènes qui ont lieu au sein des scintillateurs sont complexes. En effet, contrairement aux scintillateurs inorganiques, qui sont composés d'un seul et unique cristal avec des centres de luminescence, les scintillateurs organiques sont un mélange de plusieurs

3.2. CARACTÉRISTIQUES DES SCINTILLATEURS ORGANIQUES SOLIDES

types de molécules. En fait, il est nécessaire de distinguer les scintillateurs organiques liquides et les solides. Les phénomènes physiques, bien qu'analogues, ne se produisent pas avec la même intensité à cause du non mouvement des molécules les unes par rapport aux autres dans le cas d'un solide.

Les scintillateurs plastiques dopés au Bore sont des solides composés de quatre types de molécules. Le composé majoritaire est appelé le solvant, il s'agit généralement soit du polystyrène soit du polyvinyltoluène. Il constitue la matrice. Deux composés luminescents y sont inscrits, le soluté primaire et le soluté secondaire.

- Le dépôt d'énergie s'effectue dans le solvant. Le solvant transmet une grande partie de son énergie au soluté primaire. Une partie de cette énergie est également convertie en fluorescence du solvant.
- Le soluté primaire permet l'essentiel de l'émission de lumière.
- Le soluté secondaire ou "wavelength-shifter" assure l'adaptation de la longueur d'onde des photons émis pour une bonne transmission du signal lumineux et une bonne adaptation du spectre d'émission du scintillateur au maximum de sensibilité de la photocathode du photomultiplicateur.

Le dopant, qui peut être par exemple du Bore 10, constitue le quatrième type de molécules présentes. Sensible aux neutrons thermiques, elle permet leur détection par réaction de capture (n, α). Cependant, son action au niveau de la luminescence est nulle, voire négative. En effet, cette molécule est considérée comme une impureté qui induit des centres d'extinction ou "quenching", ce qui a pour principale conséquence de diminuer le rendement de luminescence de l'ensemble du scintillateur. Ainsi, un scintillateur plastique dopé au Bore a, pour une même particule avec une énergie identique, un rendement lumineux plus faible que son homologue non dopé. Ceci se traduit également par une perte de transparence du matériau. Ce problème impose l'utilisation de longueur de scintillateur relativement faible (typiquement inférieure à 50 cm).

Les principales caractéristiques physiques des scintillateurs organiques sont les suivantes :

- Le signal lumineux généré par les scintillateurs organiques est très rapide puisque le temps de descente du signal est inférieure à 1 ns et que la largeur de l'impulsion à mi-hauteur ne dépasse pas 20 à 30 ns.
- La longueur d'onde des photons générés est généralement comprise entre 350 et 450 nm. Cette longueur d'onde est fixée par le "Wavelength-shifter" utilisé.
- La masse volumique du matériau d'environ 1 g.cm^{-3} .

3.3 Traitement théorique de la production de lumière

Tout type de molécule fluorescente peut potentiellement faire partie d'un système scintillant. Le choix du type de molécules à utiliser se fera en tenant compte des spectres de fluorescence, d'absorption, de l'efficacité quantique de fluorescence et des temps de décroissance de l'émission lumineuse.

Le mécanisme de scintillation dans les matériaux met en oeuvre les deux types de fluorescence (prompte et retardée) et de phosphorescence [Birks 51], [Brooks 79] et [Papadopoulos 99].

3.3.1 Mécanismes de la scintillation

Une particule ionisante perd son énergie au sein du solvant par excitation - ionisation des molécules. Dans ce cas, ce sont essentiellement les électrons π qui sont amenés à des niveaux excités. Les états électroniques π peuvent être excités :

soit directement par la particule incidente,
soit par des électrons secondaires,
soit par la recombinaison d'ions,
soit par des rayons X ou des photons U.V. dont l'émission suit la recombinaison d'ions.

Il peut également se produire un phénomène marginal avec les électrons des liaisons sigma. Une fois excités, ils peuvent induire, eux-aussi, la production d'un faible signal lumineux.

Les électrons π sont faiblement liés, ce sont eux qui vont fournir l'essentiel du signal de scintillation. (Cf. le schéma des niveaux d'excitation des électrons présenté sur la figure 3.3)

Les états singulets, état de spin 0, (notés S_{ij} sur le schéma) sont des états où les électrons sont et restent appariés malgré l'excitation. Ces niveaux d'excitation électronique sont généralement séparés d'une énergie de quelques eV (typiquement 3 à 4 eV en moyenne, ce qui correspond à des longueurs d'onde autour de 400 nm). A ces niveaux se superpose une structure fine correspondant aux niveaux vibrationnels des atomes autour de leur position d'équilibre dans la molécule même. L'écart moyen entre ces niveaux vibrationnels est de 0,15 eV.

Les états triplets, état de spin 1, (notés T_{ij} sur le schéma) correspondent aux électrons non appariés. L'espacement énergétique entre états triplets est plus faible que pour les états singulets.

Dans les conditions normales de température et de pression, toutes les molécules sont considérées dans l'état fondamental (noté S_{00} sur le schéma). En effet, dans ce cas l'énergie thermique est d'environ 25 meV. Elle n'est pas suffisante pour exciter les molécules.

Lors d'une excitation du milieu, le peuplement des états S_{ij} ($i \geq 1$) se fait rapidement par les électrons π en quelques 10^{-13} s. Par contre, lors d'une ionisation, les états T_{ij}

3.3. TRAITEMENT THÉORIQUE DE LA PRODUCTION DE LUMIÈRE

($i \neq 0$) sont peuplés. L'ensemble de ces états S_{ij} ou T_{ij} se dépeuplent en 10^{-12} s vers les états S_{10} et T_{10} . Cette désexcitation se réalise de façon non radiative. L'énergie est donc dissipée essentiellement sous forme de phonons vibrationnels dans la matrice constituée par l'enchevêtrement des molécules du solvant [Birks 58], [Brooks 59].

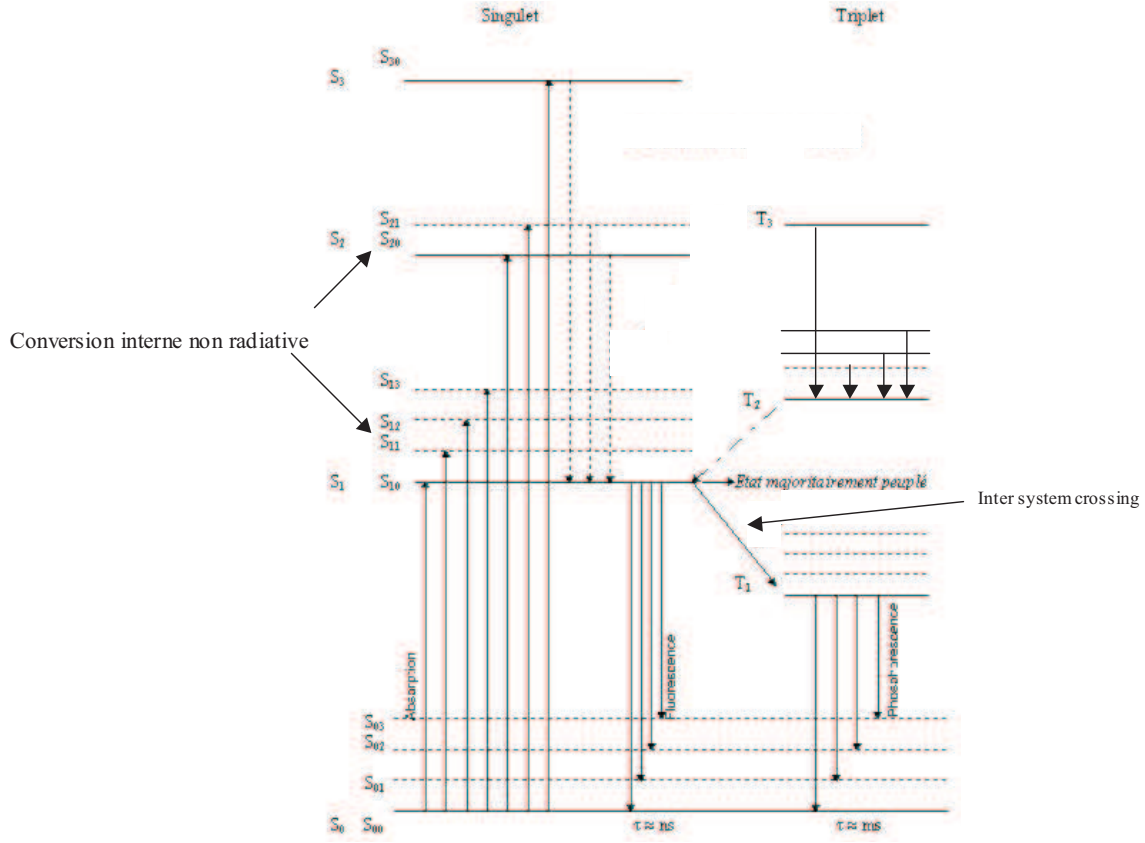


FIG. 3.3: Schéma des niveaux énergétiques moléculaires expliquant les mécanismes de fluorescence et phosphorescence.

Les molécules dans l'état S_{10} se désexcitent vers des sous-états S_{0i} qui retournent à l'état fondamental en 10^{-9} s, générant ainsi la fluorescence principale du scintillateur. Les niveaux T_1 ne peuvent se désexciter que très lentement vers des états S_{0i} , de part les règles de sélection des transitions dipolaires électriques. Ils donnent ainsi naissance au phénomène de phosphorescence qui dépend de la température contrairement à la fluorescence qui ne dépend pas de la température. Les molécules dans un état triplet peuvent aussi (sous certaines conditions de fortes densités d'ionisation) interagir deux à deux en s'annihilant.

$$(T_1 + T'_1 \rightarrow S_{10} + S'_{00})$$

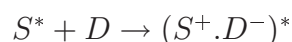
Ce processus est appelé fluorescence retardée avec un temps caractéristique de 10^{-7} à 10^{-6} secondes. Plus la particule est ionisante (Z élevé et énergie importante) plus le peu-

plement des états triplets est favorisé, c'est ce qui permet la réalisation de la discrimination entre particules ayant interagi au sein du scintillateur.

Ainsi, ce qui est communément appelé la composante lente de la lumière est en fait la contribution de la fluorescence retardée au signal lumineux. Ce processus n'est pas à décroissance exponentielle [Voltz 68b][Voltz 68a] contrairement à la fluorescence prompte, qui représente la composante rapide du signal lumineux provenant du scintillateur. Il peut cependant y être assimilé sans réaliser une grosse erreur sur l'évaluation de la durée de vie de ce type d'états excités.

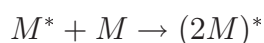
3.3.2 Phénomènes de "quenching"

Face à cette production de lumière, des phénomènes dits de "quenching" ou d'extinction vont limiter la quantité de photons susceptibles de sortir du scintillateur [Yokoi 85]. Il existe différentes explications de ce quenching, la principale est la formation d'excimères ("excited dimere") au sein du matériau. Ce quenching peut se produire entre molécules de nature différente (S et D). Une molécule excitée du solvant (S) va interagir avec une molécule neutre (D) pour former un dimère.



Le complexe ainsi formé est lui aussi excité. Il peut perdre son énergie par désexcitation non radiative, soit par conversion interne, soit par dissociation en radicaux. Ces phénomènes conduisent à une dégradation thermique de l'énergie et ainsi à une baisse du rendement de scintillation. De plus, la formation de ce type de dimère est d'autant plus probable que la densité d'ionisation est importante et donc que la particule ayant interagi est lourde et énergétique. Cet édifice moléculaire n'existe qu'à l'état excité. Une fois son énergie dégradée, les deux molécules se séparent, chacune étant alors à l'état fondamental.

L'autre type de quenching affectant de façon notable la production de lumière est l'autoextinction. Une molécule excitée peut s'associer à une molécule de même nature à l'état fondamental pour former un dimère. Dans ce cas il s'agit d'un excimère particulier puisque les molécules sont de même nature.



Trois voies de désexcitation de cet édifice moléculaire sont possibles. Il peut soit se dissocier en ses deux composés initiaux, soit émettre un photon, soit, enfin, se désexciter par un processus non radiatif. Le rendement de fluorescence sera donc d'autant plus diminué que l'échange d'énergie entre molécules de même nature est favorisé (par exemple par une forte concentration de soluté). C'est pour cette raison que, pour réaliser un scintillateur, la molécule fluorescente n'est pas utilisée seule mais mélangée à un solvant. A forte concentration de soluté dans le solvant, il a été constaté une diminution du rendement de scintillation à cause de ce phénomène d'autoextinction.

3.3.3 "Wavelength - shifter"

Afin de favoriser la propagation de la lumière dans le scintillateur, il est courant d'ajouter une molécule supplémentaire qui augmente la longueur d'onde et donc qui extrait la lumière émise du spectre d'absorption de la molécule fluorescente. La présence de cette molécule diminue donc l'autoabsorption du matériau. Ce composé est connu sous le terme de "wavelength - shifter", littéralement "décaleur de longueur d'onde". Il fonctionne par simple fluorescence, c'est-à-dire par excitation d'un niveau S_1 . Le rendement de conversion est fonction de la quantité d'énergie dissipée de façon non radiative. Le but de cette conversion de fréquence étant de maintenir un rendement de luminescence important, les molécules utilisées comme "wavelength - shifter" doivent avoir de très bons rendements de fluorescence.

Ce type de molécules permet également d'adapter la longueur d'onde d'émission du scintillateur au maximum d'efficacité quantique de conversion des photons en photo-électrons par la photocathode du photomultiplicateur.

3.3.4 Les matériaux luminescents

La présence de noyaux benzéniques est l'une des conditions permettant d'obtenir une fluorescence importante du matériau organique. En effet, les électrons π délocalisés possèdent des propriétés électroniques telles qu'ils peuvent être facilement excités. La résistance et la stabilité de ces matériaux est due à la présence de ces noyaux benzéniques.

Ainsi, l'anthracène et le naphthalène fluorescent facilement par excitation nucléaire. Intrinsèquement ils disposent d'une bonne transparence à leur propre longueur d'onde d'émission. L'anthracène sert de référence en ce qui concerne la quantité de lumière générée par les scintillateurs, qu'ils soient inorganiques ou organiques. L'anthracène génère environ 20 000 photons par MeV d'énergie déposée. Typiquement, l'anthracène ne représente que 50 % de la réponse lumineuse d'un cristal de NaI(Tl).

3.4 Loi de Birks

La loi semi-empirique (Cf. équation **3.1**) a été formulée par Birks durant les années 1950 d'après les mesures expérimentales qu'il avait lui-même effectuées [Birks 58].

Elle a ensuite été modifiée, en ajoutant au dénominateur un terme du second ordre, par Chou [Knoll 89]. L'objectif est de mieux rendre compte de la non linéarité de la réponse lumineuse pour les particules lourdes et donc fortement ionisantes.

$$\frac{dL}{dx} = \frac{S \frac{dE}{dx}}{1 + k.B \frac{dE}{dx} + C \left(\frac{dE}{dx} \right)^2} \quad (3.1)$$

Cette forme différentielle donne en fait la quantité infinitésimale dL de photons produits sur un parcours dx pour une perte d'énergie de la particule sur ce parcours dx égale à dE .

Cette formule dispose de 3 paramètres :

- ▶ S qui est l'efficacité de luminescence et qui réunit l'ensemble des phénomènes physiques conduisant à la génération de lumière,
- ▶ kB qui est le facteur dit de "quenching" ou d'extinction. Il rassemble l'ensemble des phénomènes défavorables vis à vis de la production et de la propagation de lumière. Il contient à la fois l'efficacité de capture des centres quenchers et leurs concentrations dans le matériau scintillant,
- ▶ C qui n'a pas de réelle signification physique et qui permet d'ajuster au mieux cette formule pour les particules lourdes et ionisantes (typiquement les alpha et les ions Lithium pour ce qui concerne ces travaux).

Il ne semble pas simple de mettre en évidence une loi complète conduisant à des résultats numériques aussi proches que ceux déduits en utilisant la formule de Birks. L'émission de lumière dépend de nombreux paramètres dont beaucoup sont peu connus, à cause, essentiellement, de difficultés de mesures.

Cependant quelques auteurs [Voltz 68a] et [Dupont 67] ont formulé une expression en tenant compte des différentes concentrations et efficacités de luminescence des matériaux. Si cette tâche semble a priori abordable pour des scintillateurs simples, tels les cristaux d'anthracène, elle est nettement plus ardue lorsqu'il s'agit de mélange non homogène de différentes molécules.

De nombreux auteurs, par exemple [Craun 70] et [Smith 68], se sont intéressés à la caractérisation de scintillateurs plastiques non dopés développés de façon commerciale ou dans leur laboratoire de recherche. Le but essentiel de ces expériences est d'obtenir les paramètres de luminescence.

Les paramètres S , kB et C composant la formule peuvent être obtenus par intégration numérique ajustée sur les points expérimentaux par la méthode des moindres carrés non linéaire. Ainsi, à partir de cette paramétrisation, il est alors possible d'extrapoler la quantité de photons émis en fonction du type de particule qui a interagi avec le scintillateur et de son énergie si celle-ci est contenu dans le domaine de validité des mesures réalisées.

La figure 3.4 montre bien la non linéarité de la réponse lumineuse pour différentes particules [Badhwar 67] et [Saraf 88]. La réponse lumineuse est d'autant plus importante que la particule est légère, peu ionisante et énergétique [Voltz 66]. Par exemple, un électron de 1 MeV entraîne la génération de 100 fois plus de photons qu'une particule alpha de

3.4. LOI DE BIRKS

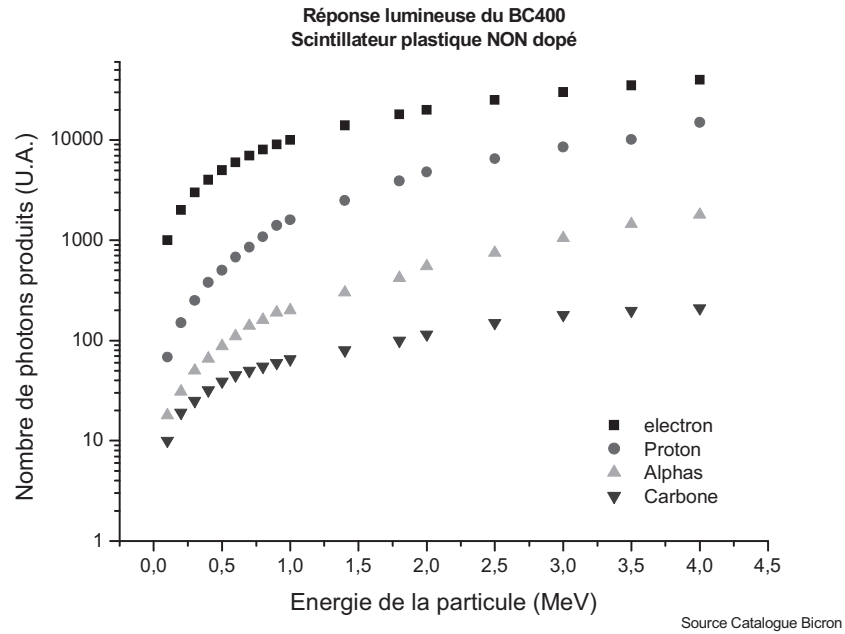


FIG. 3.4: Non linéarité de la réponse lumineuse d'un scintillateur plastique non dopé BC400.

1 MeV. De même, une particule alpha de 4 MeV génère autant de photons qu'un proton de 1 MeV ce qui correspond au rapport des masses. Ainsi, les ions Hélium et Lithium produits par la réaction de capture des neutrons thermiques par les noyaux de Bore 10 génèrent peu de lumière en regard de la quantité de photons générés par les électrons qui sont produits par l'interaction des gamma avec le scintillateur.

Chapitre 4

Fabrication et caractérisation optique de scintillateurs plastiques

Ce chapitre s'intéresse à la fabrication des scintillateurs plastiques dopés ou non et à l'optimisation du procédé pour maximiser le rendement lumineux des scintillateurs ainsi réalisés. Une fois réalisé, ces scintillateurs ont été caractérisés afin d'en déterminer l'ensemble des paramètres physiques (indice optique, longueur de demi-atténuation) nécessaires pour simuler correctement la génération et la propagation de la lumière dans ce type de scintillateurs.

4.1 Constituants

4.1.1 Composés scintillants

Les produits, qui permettent de réaliser le polymère de base, forment la matrice ou solvant. A ce solvant, sont ajoutées des molécules dont les propriétés intrinsèques en font des centres d'émission de lumière. Cette luminescence est produite à partir de transfert d'énergie existant entre la matrice et ces molécules fluorescentes. Cette émission de lumière primaire demeure inexploitable en l'état car la longueur d'onde d'émission correspond à peu de choses près à la longueur d'onde d'absorption du matériau. L'essentiel des photons serait absorbé par le matériau scintillant, s'il n'y avait de modification de la longueur d'onde de ces photons grâce aux phénomènes d'absorption - réémission des molécules du "wavelength-shifter". Ce décalage entre la longueur d'onde d'absorption et celle d'émission est qualifié de décalage de Stokes. En outre, ces molécules permettent d'adapter la longueur d'onde d'émission du scintillateur à celle du maximum d'efficacité quantique de la photocathode du photomultiplicateur.

Les molécules utilisées comme composé primaire pour la luminescence sont généralement le PPP (1,4-diphenylbenzene ou p-terphényl), le PPO (2,5-diphenyloxazole) ou le TBP (1,1',4,4'-tetraphenylbutadiene). Ces molécules émettent, suite à une excitation, des photons dont la longueur d'onde se situe généralement autour de 350 nm.

CHAPITRE 4. FABRICATION ET CARACTÉRISATION OPTIQUE DE SCINTILLATEURS PLASTIQUES

Les molécules utilisées comme composés secondaires réalisent l'opération de modification de longueur d'onde comme, par exemple, le POPOP (1,4-bis(5-phenyloxazol-2-yl)benzène). Ces molécules absorbent les photons émis autour de 300 nm - 400 nm et les réémettent avec une longueur d'onde autour de 400 nm - 450 nm.

Afin d'améliorer les performances de discrimination neutron - gamma, il est nécessaire d'utiliser un composé primaire avec une constante lente de décroissance de la fluorescence la plus importante possible, comme c'est le cas avec les scintillateurs liquides [Tilquin 95]. La tableau 4.1 présente quelques exemples des deux constantes de décroissance de la luminescence pour différents composés simples ou en mélange [Birks 51]. La composante lente du signal lumineux correspond au peuplement des états triplets. Ce peuplement est d'autant plus favorisé que la particule ayant interagi est ionisante et énergétique. Une étude a été réalisée par Czirr [Czirr 70] sur l'influence du solvant sur les capacités de discrimination du scintillateur. Il a été montré que le solvant n'avait pas d'influence notable sur les performances de discrimination. Une autre approche consisterait à utiliser certaines molécules, comme le naphthalène, qui favorisent le peuplement des états triplets. Elles peuvent être utilisés en dissolution dans la matrice de base en polystyrène afin d'améliorer les performances de discrimination de particules du scintillateur. Pour que cet effet soit notable, la densité de molécules de naphthalène doit être importante. Typiquement la concentration a une valeur comprise entre 10 et 20 % en masse par rapport au polystyrène. Avec ce composé supplémentaire, ce ne sont pas moins de quatre composés différents qui sont dissouts dans la matrice de polystyrène. La masse totale cumulée de ces composés peut atteindre 30 % de la masse totale du produit final. Les limites de solubilité des produits sont donc rapidement atteintes puisqu'elles dépendent du solvant et des produits utilisés, pris séparément et en mélange.

Type de scintillateur	Constante rapide (ns)	Constante lente (ns)
Trans-stilbène	6, 2	370
Anthracène	33	370
p-quaterphényl	4, 5	350
p-terphényl (4 g.l ⁻¹) et POPOP (0,4 g.l ⁻¹) dans le toluène	2, 8	200

Tableau 4.1: Constantes temporelles pour différentes molécules et mélanges

Les figures 4.1 et 4.2 présentent les caractéristiques optiques d'émission et d'absorption de la lumière pour les composés primaires (le p-terphényl) et secondaires (le POPOP) retenus pour ce travail. Ces spectres sont donnés à titre indicatif. En effet, ils ont été réalisés dans le cyclohexane. Or dans les scintillateurs, ils sont mélangés à du polystyrène, ce qui modifie légèrement leurs propriétés d'émission et d'absorption de part le changement d'environnement. Cependant, il apparaît très nettement que le spectre d'émission du POPOP permet de décaler l'émission lumineuse du p-terphényl pour rendre le spectre d'émission du scintillateur compatible avec le maximum d'absorption de la photocathode

4.1. CONSTITUANTS

du photomultiplicateur utilisé (à savoir centré autour de 425 nm). Les spectres d'émission ont été réalisés à une longueur d'onde excitatrice située à 280 nm (pour le p-terphényl) et à 340 nm (pour le POPOP), à l'aide d'un spectrophotomètre de fluorescence Hitachi F-450. Les spectres d'absorption ont été réalisés à l'aide d'un spectromètre UV/Vis/NIR Perkin Elmer Lambda 19.

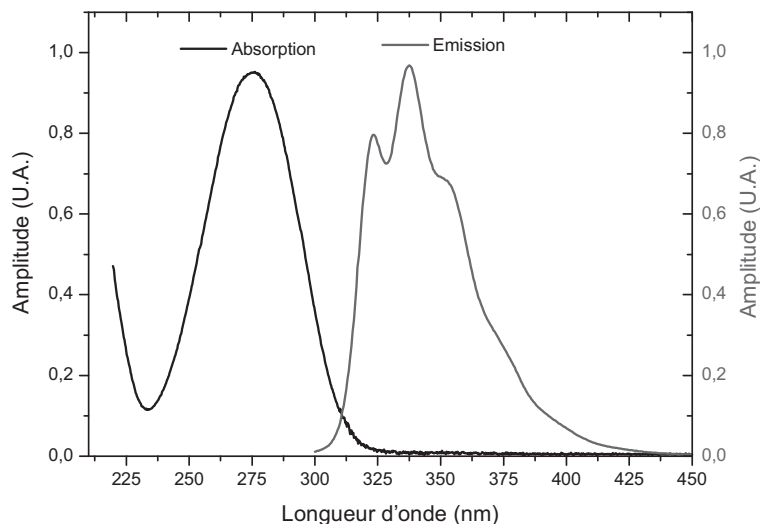


FIG. 4.1: Spectre d'absorption et d'émission du p-terphényl dans le cyclohexane.

Les formules développées des constituants utilisés pour la fabrication de scintillateurs plastiques sont données sur les figures 4.3, 4.4, 4.5 et 4.6. Pour toutes ces molécules, la structure de base contient au moins un noyau benzénique qui, de part sa richesse en électrons π , est à la base du phénomène de scintillation.

4.1.2 Les éléments dopants

L'objectif du dopage pour ce type de scintillateur est de les rendre sensibles aux neutrons thermiques par des réactions nucléaires de capture.

Les réactions de capture des matériaux susceptibles d'être utilisés pour la détection de neutrons thermiques sont les suivantes :

- $^3\text{He} + ^1_0\text{n} \longrightarrow ^3_1\text{H} + ^1_1\text{p} + 0,77 \text{ MeV}$
- $^6\text{Li} + ^1_0\text{n} \longrightarrow ^3_1\text{H} + ^4_2\text{He} + 4,79 \text{ MeV}$
- $^{10}\text{B} + ^1_0\text{n} \longrightarrow ^7\text{Li}^* + ^4_2\text{He} + 2,30 \text{ MeV} \longrightarrow ^7\text{Li} + ^4_2\text{He} + \gamma (0,48 \text{ MeV})$
- $^{155}\text{Gd} + ^1_0\text{n} \longrightarrow ^{156}\text{Gd}^* \longrightarrow ^{156}\text{Gd} + (\gamma's + e^- ; 7,9 \text{ MeV})$
- $^{235}\text{U} + ^1_0\text{n} \longrightarrow \text{neutrons} + \text{fragments de fission} \pm 160 \text{ MeV}$

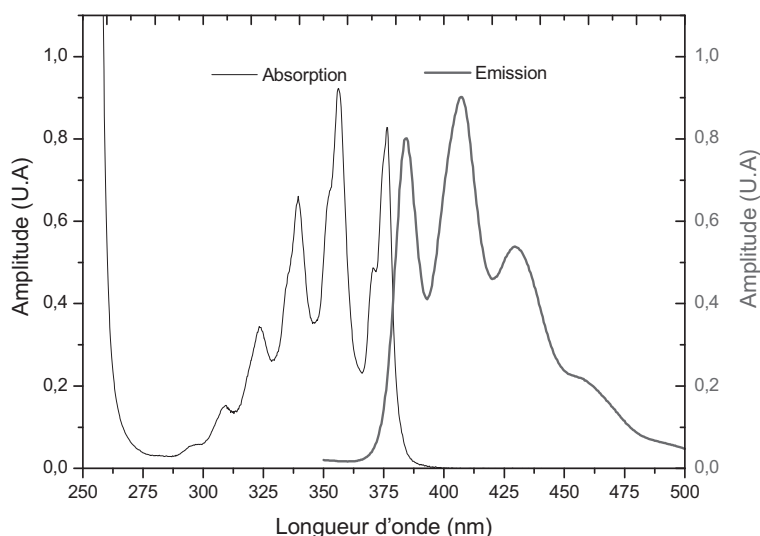


FIG. 4.2: Spectre d'absorption et d'émission du POPOP dans le cyclohexane.

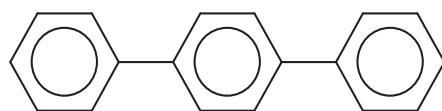


FIG. 4.3: Formule développée du p-terphényl

La réaction de fission est utilisée dans les détecteurs à gaz à dépôt d'uranium enrichi en ^{235}U . Son utilisation est proscrite dans les scintillateurs puisqu'il s'agit de matière nucléaire dont la détention et l'utilisation sont très réglementées.

En fait, le principal problème est de trouver un composé chimique susceptible de se mélanger avec la base du scintillateur plastique. En outre, ce matériau doit être relativement inerte vis à vis des autres constituants scintillants.

- **L'Hélium 3** est écarté à cause de son état physique gazeux dans les conditions normales de température et de pression.
- Le **Lithium** est un alcalin très réactif. Il est utilisé en chimie organique et constitue toute une famille de composés R-Li. Ces composés sont très fragiles car très réactifs et facilement hydrolisables. Ce type de réactif est en effet susceptible d'interagir avec les doubles liaisons du styrène, ce qui pourrait amorcer une polymérisation par voie anionique. Dans ce cas de figure, le Lithium serait de plus exclu de la matrice du polymère final, le rendant impropre pour le dopage du scintillateur final. Par contre, en tant qu'élément seul, il est très utilisé dans la fabrication de verre scintillant

4.2. MODE OPÉRATOIRE

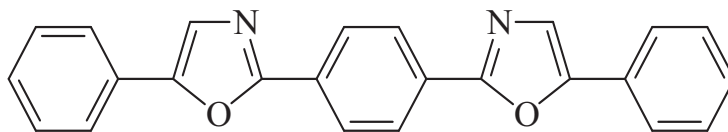


FIG. 4.4: Formule développée du POPOP

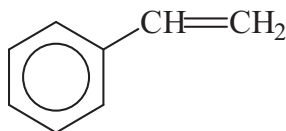


FIG. 4.5: Formule développée du styrène

inorganique dopé au Lithium 6. En effet, il est relativement facile de l'adjoindre à d'autres éléments dans une structure amorphe de type verre.

- Le **Gadolinium** génère, après interaction avec les neutrons thermiques, des électrons de conversion interne de relativement faible énergie (autour de 100 keV). Avec ce composé, se pose le problème de la discrimination de particules. En effet, comment différencier un électron provenant d'une interaction d'un gamma (par effet Compton ou photoélectrique) d'un électron provenant d'une conversion interne du Gadolinium ?

C'est pourquoi le choix du dopant s'est orienté vers un constituant boré organique. La chimie des boranes est très développée en cancérologie notamment grâce au traitement par BNCT (Boron Neutron Capture Therapy) [Housecroft 90]. Cette technique utilise des molécules organiques borées qui se fixent sur les cellules cancéreuses. Lorsque le patient est soumis à une irradiation neutronique, les noyaux de Bore 10 se cassent en ions alpha et Lithium détruisant ainsi la cellule malade.

La molécule d'orthocarborane présentée sur la figure 4.7 présente une forme cage caractéristique. La synthèse de ce type de carborane est d'ailleurs détaillé dans les références suivantes [Fein 63a], [Fein 63b], [Heying 63] et [Adams 64]. Le mélange avec le polystyrène est rendu possible par la présence de liaison C-H qui facilite la solubilité de ce type de composé au sein du polymère.

4.2 Mode opératoire

La fabrication des scintillateurs plastiques dopés au Bore, mise au point durant ces travaux de thèse, a donné lieu à un dépôt de brevet de la part de la société américaine Nanoptics Inc [Tymianski 93].

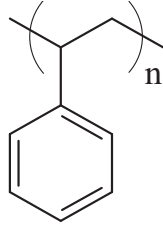


FIG. 4.6: Formule développée du polystyrène

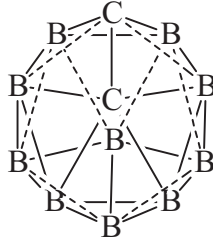
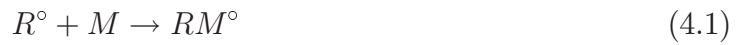


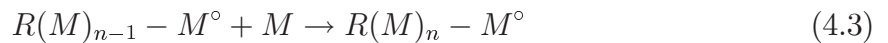
FIG. 4.7: Formule développée du o-carborane

4.2.1 Principe de la polymérisation

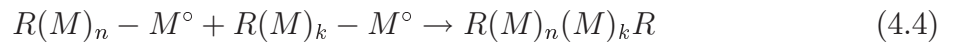
La réalisation d'un scintillateur organique plastique implique la fabrication d'un polymère. En chimie macromoléculaire, il est courant d'utiliser des initiateurs de polymérisation radicalaires ou générateurs de radicaux libres comme l'AzoIsoButyroNitrile ou AIBN afin de contrôler la polymérisation. Ce type de composé est de la forme $R-N=N-R$, qui en chauffant se décompose en N_2 et en 2 radicaux R° . L'amorçage est réalisé par addition de ces radicaux sur les molécules du monomère (M), avec ouverture de la double liaison et formation du radical RM° :



La croissance de la chaîne s'effectue par additions successives et rapides de molécules de monomère :

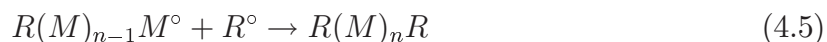


Les réactions de terminaison s'effectuent, en l'absence d'impuretés, soit par couplage :

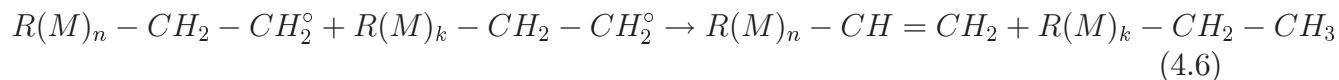


4.2. MODE OPÉRATOIRE

soit par addition du radical R° :



soit par dismutation :



Pour éviter toute réaction de terminaison par des impuretés, il est nécessaire de travailler avec des composés purs et un milieu inerte. En effet, l'Oxygène est un agent de terminaison efficace. Il s'additionne pour donner le radical ROO° . Ce radical est stable et ne peut pas amorcer une nouvelle chaîne macromoléculaire. D'ailleurs l'Oxygène est néfaste pour les propriétés finales de scintillation puisqu'il est aussi un quencheur très efficace des états triplets des composants du scintillateur [Horrocks 71a] et [Horrocks 71b]. Les impuretés pourraient aussi nuire au rendement de luminescence.

La réalisation de scintillateurs plastiques impose donc d'utiliser des produits aussi purs que possible pour éviter l'apport d'impuretés qui pourraient nuire au rendement de luminescence. Ainsi les initiateurs de polymérisation radicalaire couramment utilisés laissent toujours un résidu au sein du polymère final. C'est donc la polymérisation radicalaire par voie thermique qui a été retenue pour ce travail. Le styrène est le seul monomère dont il a été montré sans équivoque qu'il peut se polymériser par auto-amorçage. La vitesse des polymérisations auto-amorçées est beaucoup plus faible que celle des polymérisations amorçées par décomposition thermique d'un amorceur. Ainsi la vitesse de polymérisation auto-amorcée du styrène en masse (en l'absence de solvant) est de $1,98 \cdot 10^{-6}$ mol/litre à $60^\circ C$ [Odiat 94].

Autrement dit, le taux de conversion du monomère en polymère varie de 0,1 % par heure à $60^\circ C$, à 9 % par heure pour une température de polymérisation de $120^\circ C$. Ce taux atteint 3,28 % par heure à $60^\circ C$ avec une concentration en amorceur de 1 % en poids par rapport au monomère [Mercier 93]. Si la polymérisation débute à $60^\circ C$, peu de radicaux sont créés et des chaînes de polymères longues sont obtenues. A plus haute température, beaucoup de radicaux sont formés et le monomère est rapidement transformé. Il en résulte des chaînes de polymère plus courtes. Ceci favorise la diffusion Rayleigh dans le polymère. De plus, la réaction de polymérisation étant exothermique, elle provoque une élévation rapide de la température. Des points chauds peuvent se développer en différents endroits de l'ampoule et conduire rapidement à l'apparition de bulles. Le milieu est très visqueux. Les bulles se trouvent donc facilement piégées dans la masse. La polymérisation exothermique doit donc être rigoureusement contrôlée, principalement en début de polymérisation. La température initiale pour amorcer la polymérisation doit être comprise entre 90 et $110^\circ C$ [Rebourgeard 99]. L'inconvénient majeur de cette méthode est la difficulté à maîtriser la cinétique de la réaction de polymérisation.

4.2.2 Purification des produits

L'ensemble des produits scintillants utilisés doivent avoir une pureté supérieure à 95 % ou "scintillation grade", y compris le styrène qui doit être distillé.

L'ortho-carborane est quant à lui filtré car son degré de pureté varie en fonction des approvisionnements de 98 % à 95 % de pureté. Pour une pureté commerciale de 95 %, l'analyse élémentaire en masse donne :

- méta-carborane à 0,33 %,
- ortho-carborane à 96,73 %,
- éthyl-ortho-carborane à 1,21%,
- autre composé boré de masse molaire 182 g à 1,74 % dont la structure n'a pu être déterminée.

Tous ces composés chimiques sont solubles dans le styrène à l'exception du composé boré de masse molaire 182 g qu'il faut éliminer par filtration.

Le styrène est distillé sous vide afin d'en éliminer le *terbutylcatechol*, inhibiteur de polymérisation radicalaire présent à une concentration de quelques ppm. Le dispositif (Cf. figure 4.8) est constitué d'une colonne de Vigreux, d'un réfrigérant et d'un dispositif appelé "pie de vache" permettant de séparer la fraction de tête de la distillation du reste de la distillation. Afin d'éviter la polymérisation du styrène lors de la distillation, de l'hydroquinone, un autre inhibiteur de polymérisation radicalaire, est incorporé au styrène à distiller dans le ballon. Quelques morceaux de pierre ponce sont également ajoutés car ils permettent d'homogénéiser thermiquement le mélange. La température du palier de distillation se situe autour de 46°C , pour le vide primaire de 20 mm de Hg utilisé.

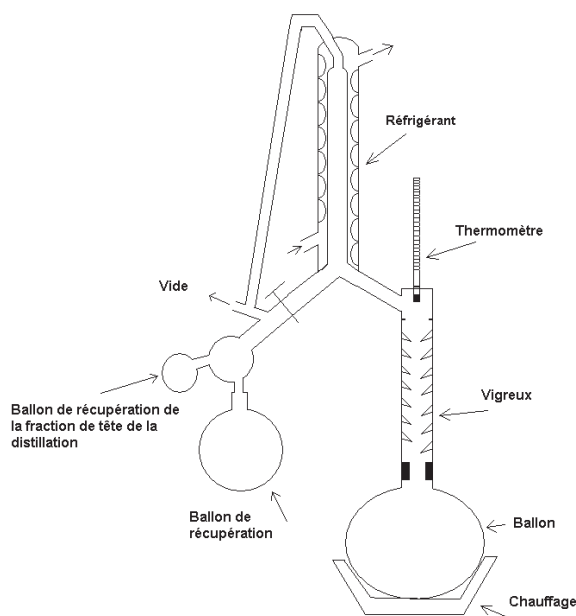


FIG. 4.8: Schéma de l'appareillage de distillation utilisé.

4.2. MODE OPÉRATOIRE

4.2.3 Dégazage et mélange

Après la distillation du styrène, un bullage à l'argon est effectué afin de chasser l'oxygène. L'Oxygène est néfaste à double titre. En effet, comme il l'a été noté précédemment, l'Oxygène est un inhibiteur de polymérisation assez efficace et c'est également un quenchneur très efficace des états triplets des scintillateurs.

Une fois le bullage terminé, le styrène distillé est mélangé au PPP, au POPOP puis à l'ortho-carborane dans les proportions indiquées dans le tableau 4.2. Un dopage à 5 % en masse en Bore naturel induit un dopage à 1 % en Bore 10. Compte tenu de la masse molaire de l'ortho-carborane, il faut 6,66 % d'ortho-carborane, pour avoir le même dopage à 1 % en Bore 10.

Produit	Quantité en % massique
Styrène	Référence
p-terphényl	1,5 %
POPOP	0,01 %
ortho-carborane	1 - 10 %

Tableau 4.2: Composition des scintillateurs fabriqués

Après homogénéisation, l'ensemble est dégazé, à l'aide d'une pompe primaire couplée à un piège à azote, par une série (entre 2 et 4) de gels à l'azote liquide (77 K) puis dégels à température ambiante. Cette opération a pour objectif de retirer l'ensemble des gaz dissouts au sein du mélange et notamment l'Argon ainsi que ceux prisonniers des poudres (POPOP, p-terphényl et ortho-carborane). En effet, lors du chauffage du mélange durant la polymérisation, ces gaz pourraient s'échapper et donc former des bulles. Or ces bulles sont néfastes pour une bonne propagation de la lumière dans le scintillateur.

4.2.4 Cycle thermique

Dès lors l'ampoule à polymériser est placée dans un bain d'huile maintenu par régulation thermique à 90 °C. Dès que le mélange est devenu visqueux, un cycle thermique est réalisé en incluant une montée de la température jusqu'à 140 °C.

L'efficacité du transfert d'énergie entre le polystyrène et le p-terphényl diminue si la température de polymérisation augmente lors du procédé. De même, une polymérisation incomplète détériore les propriétés de luminescence de ces matériaux. La polymérisation n'est pas totale, il reste toujours quelques % de monomère non polymérisés dans le polymère final. Ce monomère est liquide et reste prisonnier des chaînes du polymère.

Selon la manière dont s'est déroulée la polymérisation, les chaînes de polymère sont plus ou moins longues. Par une mesure de masse, il est possible d'obtenir l'indice de polydispersité qui permet de connaître la longueur moyenne des chaînes du polymère.

L'analyse par S.E.C ("Size Exclusion Chromatography" ou encore chromatographie par perméation de gel) du scintillateur plastique dopé au Bore conduit, après analyse du chromatogramme, à une masse molaire en nombre de $3,5 \cdot 10^5$ et une masse molaire en poids de $6,6 \cdot 10^5$. L'ensemble de ces masses sont exprimées en équivalent polystyrène. Le polystyrène analysé a été considéré comme peu ou pas réticulé. L'indice de polydispersité est de 1,85, ce qui signifie qu'il y a une dispersion des longueurs des chaînes. Ce résultat est comparable à ceux obtenus pour des polymérisations radicalaires classiques. Des mesures de points de fusion ont montré que ce polymère ne fondait qu'à 240°C . Ceci est en contradiction avec l'hypothèse de non réticulation des chaînes. Le scintillateur fabriqué au laboratoire est donc très réticulé à cause de la méthode de polymérisation utilisée. La mesure des longueurs des chaînes de polymère est importante. En effet, les propriétés optiques du matériau sont d'autant meilleures que les chaînes de polymère ont des longueurs comparables.

4.2.5 Méthode de l'injection

Suite à des problèmes persistants d'apparition de bulles dues à la vaporisation locale de styrène au niveau de points chauds, une autre stratégie de fabrication a été retenue sur le principe de l'injection plastique sous pression, bien connu des plasturgistes. A cette fin, un moule en acier a été réalisé au sein du département. Il fonctionne selon le principe du piston. L'acier de la face intérieure est poli avec une rugosité de $0,4 \mu\text{m}$ à l'aide d'un alésage très fin. Ceci permet d'envisager une faible emprise du polymère sur les aspérités de l'acier. En complément, l'intérieur du moule a été recouvert de PolyTétraFluoroEthylène (ou PTFE) afin de limiter l'accrochage du polymère aux parois du moule. Dès que le mélange devient visqueux, celui-ci est versé sous atmosphère d'Argon dans le moule en acier téflonné. L'ensemble est mis sous pression afin d'éviter la formation de bulles.

Le plan présenté sur la figure 4.9 présente le fonctionnement de ce moule. Le piston a un double rôle. Il permet dans un premier temps de mettre le mélange sous pression durant la polymérisation puis de pousser le barreau une fois la réaction terminée. De plus, une valve a été ajoutée afin de réaliser un vide primaire au dessus de la surface du mélange. La pression résiduelle, présente entre la surface du mélange et le piston, est alors égale à la pression de vapeur saturante du styrène compte tenu du débit et de la dépression que la pompe primaire peut imposer. Une nappe chauffante est enroulée autour du moule. La température de fonctionnement de ce dispositif est programmable permettant de chauffer le mélange jusqu'à 140°C et de suivre le cycle thermique précédemment explicité.

4.2.6 Résultat

La photo 4.10 présente l'image d'un scintillateur plastique non dopé réalisé par la méthode de l'ampoule à polymériser. Le scintillateur a une longueur utile de 15 cm et un diamètre de 4 cm. Le matériau est irradié par une lampe à ultraviolet, ce qui permet d'observer la fluorescence du matériau, essentiellement due à l'action du POPOP.

4.3. CARACTÉRISATION OPTIQUE

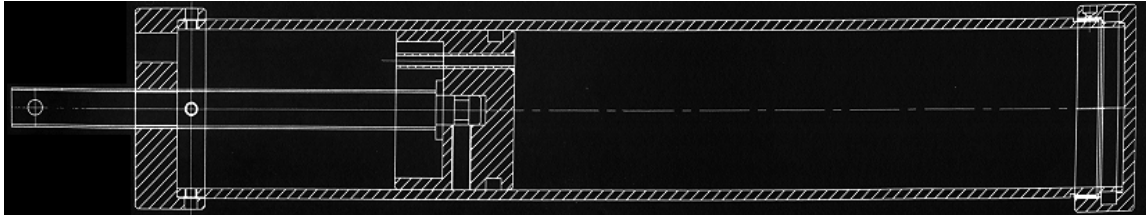


FIG. 4.9: Plan du moule destiné à la réalisation de scintillateur



FIG. 4.10: Photographie d'un scintillateur plastique illuminé par une lampe U.V.

4.3 Caractérisation optique

4.3.1 Mesure de l'indice de réfraction optique

L'indice optique des scintillateurs développés au laboratoire a été mesuré afin de connaître la façon dont la lumière se propage. L'indice de réfraction de l'échantillon a été déduit de l'angle limite de réflexion totale θ_{limite} à l'interface d'un prisme d'indice élevé ($n_{\text{prisme}}=1,9$) et l'échantillon (Cf. figure 4.11).

L'appareil utilisé pour cette mesure est un "Metricon Prism Coupler PC-2000" qui permet, par l'application d'une pression sur le film scintillant à analyser, de le coupler à un prisme de référence dont les indices optiques sont parfaitement connus. La distance entre le prisme et l'échantillon doit être inférieure à $0,1 \mu\text{m}$ pour que la mesure soit possible.

Trois longueurs d'onde ont été utilisées pour mesurer l'indice de réfraction de ce type de matériau. Les résultats des mesures sont consignés dans le tableau 4.3.

$$n_{\text{échantillon}} = n_{\text{prisme}} \cdot \sin(\theta_{\text{limite}}) \quad (4.7)$$

Le $n_{\text{échantillon}}$ est déduit de la mesure de l'angle de réflexion total d'après la relation (4.7). La formule de Sellmeier (Cf. équation 4.8) donne une bonne approximation de la

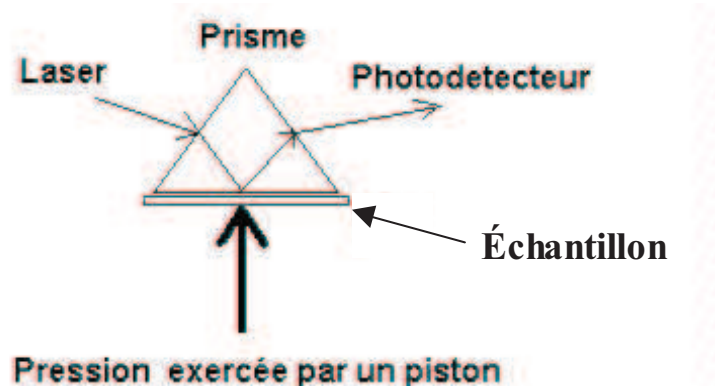


FIG. 4.11: Dispositif de mesure de l'indice optique du scintillateur

variation de l'indice en fonction de la longueur d'onde, pour les longueurs d'onde nettement supérieures à la bande d'absorption du matériau étudié.

$$n^2(\lambda) = n_0^2 + \frac{A}{\lambda^2 - \lambda_0^2} \quad (4.8)$$

Longueur d'onde (nm)	Indice mesuré
632,8	1,5893
830	1,5852
1314	1,5761

Tableau 4.3: Mesure de l'indice optique en fonction de la longueur d'onde

Les coefficients n_0 , λ_0 et A sont obtenus par ajustement par la méthode des moindres carrés aux trois mesures expérimentales.

$$\lambda_0 = 620 \text{ nm} ; n_0 = 1,57 ; A = 21329 \text{ nm}^2 \quad (4.9)$$

La longueur d'onde d'émission principale est de 425 nm pour ce type de scintillateur. Cet indice optique vaut alors par extrapolation de la relation (4.8) avec les coefficients calculés (4.9).

$$n_{425\text{nm}} = 1,61 \quad (4.10)$$

A 425 nm, la valeur obtenue par la loi de Sellmeier, suite à nos mesures, est cohérente avec celles de la littérature [Bicron 99]. Cependant, compte tenu de la proximité du maximum d'absorption qui se situe autour de 350 nm, la loi de Sellmeier est à la limite de son domaine de validité.

4.3. CARACTÉRISATION OPTIQUE

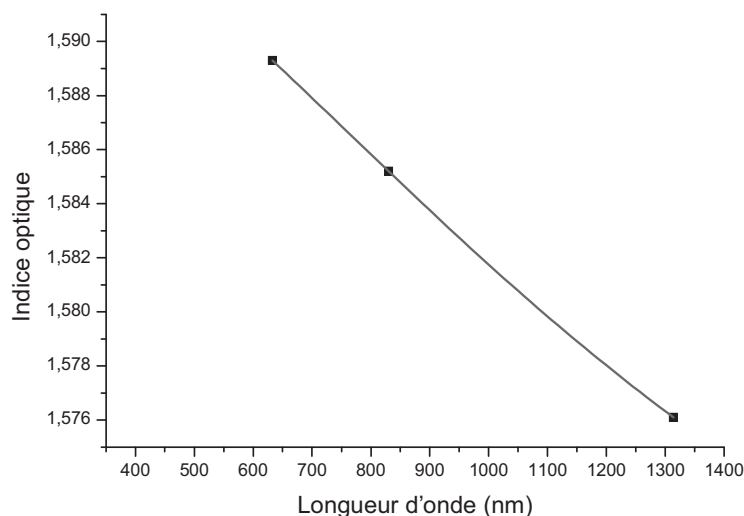


FIG. 4.12: Ajustement d'une courbe de Sellmeier aux mesures de l'indice optique d'un scintillateur plastique dopé au bore

4.3.2 Caractéristiques spectrales infra-rouges des constituants scintillants et dopants

La technique de spectroscopie InfraRouge à Transformées de Fourier (FTIR) permet de repérer les bandes caractéristiques des produits analysés. Ainsi, cette méthode d'analyse permet de distinguer les différents éléments présents dans un mélange de molécules suivant les types de liaisons chimiques dont disposent ces composés individuellement. Les spectres infra-rouges de nos échantillons ont été mesurés avec un spectromètre infra-rouge à transformée de Fourier FTIR Brüker IF 66. La résolution de cet appareillage est de 2 cm^{-1} . La caractérisation des produits grâce aux spectres FTIR implique la réalisation de pastille de produit mis en dispersion dans du KBr (cristal ionique totalement transparent dans le domaine infra-rouge). Seulement 2 mg de produit à analyser sont mélangés avec 200 mg de KBr.

Ainsi pour le polystyrène (Cf. figure 4.15) les bandes d'allongement des liaisons C-H du noyau aromatique peuvent être observées vers 3010 cm^{-1} . Les bandes de déformation hors du plan de ces liaisons C-H sont visibles entre 1660 et 2000 cm^{-1} . Les bandes aux environs de 1500 et 1600 cm^{-1} sont caractéristiques du noyau aromatique. Elles correspondent aux vibrations d'allongement des liaisons C-C du squelette aromatique. Les bandes correspondant aux vibrations de déformation dans le plan des liaisons C-H aromatique se situent entre 1000 et 1200 cm^{-1} . Les bandes de vibration de déformation hors du plan des liaisons C-H sont plus caractéristiques et se trouvent entre 900 et 675 cm^{-1} . Enfin les groupes alcanes $-\text{CH}_2-$ ont des bandes caractéristiques vers 2930 cm^{-1} et 1450 cm^{-1} . Ces bandes correspondent respectivement aux vibrations d'allongement asymétrique des liai-

CHAPITRE 4. FABRICATION ET CARACTÉRISATION OPTIQUE DE SCINTILLATEURS PLASTIQUES

sons C-H des groupes (CH_2) et aux vibrations de cisaillement de $-\text{CH}_2-$ et aux vibrations de déformation des liaisons C-H.

Les bandes autour de 1450 cm^{-1} sont superposées à celles correspondant aux liaisons C-C du squelette aromatique. C'est pourquoi ces bandes sont présentes sur le spectre du p-terphényl qui n'a pas de groupement méthylène $-\text{CH}_2-$ (Cf. figure 4.17).

Le POPOP présente un spectre (Cf. figure 4.14) plus complexe dans la région $600 - 1200\text{ cm}^{-1}$. La bande caractéristique de la vibration d'allongement de la liaison C-O se situe vers 1137 cm^{-1} , avec une bande de plus forte intensité à 950 cm^{-1} . La figure 4.16 montre la réponse obtenue pour le polystyrène lorsqu'il est mélangé avec le p-terphényl et le POPOP. Les bandes caractéristiques se trouvent alors mélangées.

L'ortho-carborane présente une bande caractéristique intense entre 2580 et 2600 cm^{-1} (Cf. figure 4.18) due aux vibrations d'allongement de la liaison B-H. Cette bande apparaît à une fréquence légèrement supérieure à la fréquence habituelle de 2450 cm^{-1} et témoigne de la présence de ^{10}B dans la molécule. La bande située autour de 3100 cm^{-1} est générée par les liaisons C-H de la molécule d'ortho-carborane.

En spectroscopie infra-rouge, le composé du mélange scintillant dopé le plus facilement identifiable est l'ortho-carborane en raison de sa bande caractéristique B-H située entre 2400 et 2600 cm^{-1} . En effet, l'absence de bandes dans la région $2500 - 2600\text{ cm}^{-1}$ sur

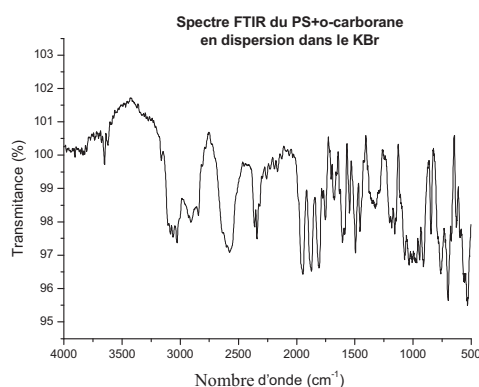


FIG. 4.13: Spectre FTIR de l'ortho-carborane dissout dans le polystyrène

le spectre FTIR 4.16 d'un scintillateur plastique non dopé permet de vérifier la présence ou l'absence d'ortho-carborane dans le produit final. Ainsi, lorsque l'ortho-carborane est mélangé avec du polystyrène (Cf. figure 4.13), les bandes caractéristiques B-H restent visibles. De plus, le spectre 4.18 confirme la structure chimique de l'ortho-carborane donné par la société Strem Chemical.

De l'ensemble des spectres FTIR précédents, il apparaît clairement que la présence de l'ortho-carborane au sein du scintillateur dopé peut être signée par cette méthode d'analyse.

4.3. CARACTÉRISATION OPTIQUE

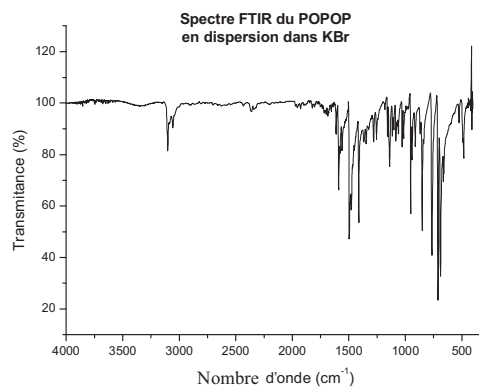


FIG. 4.14: Spectre FTIR du POPOP

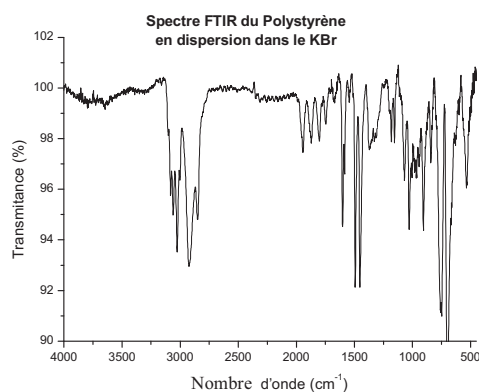


FIG. 4.15: Spectre FTIR du polystyrène

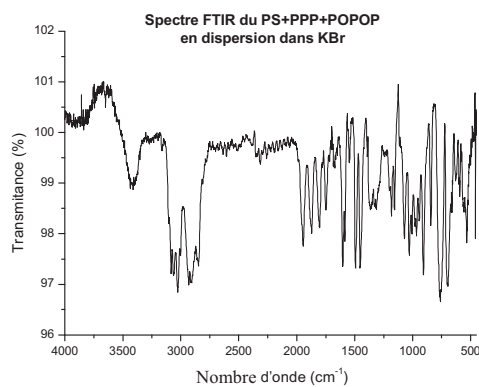


FIG. 4.16: Spectre FTIR du mélange scintillant polystyrène + p-terphényl + POPOP

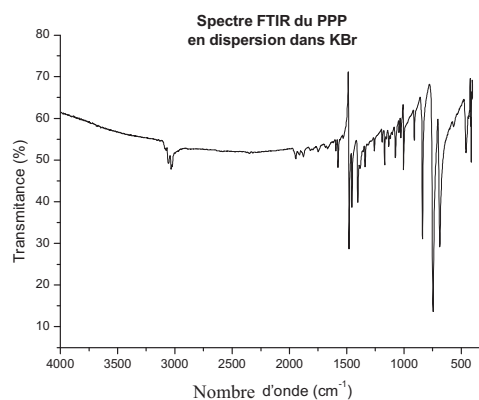


FIG. 4.17: Spectre FTIR du p-terphényl

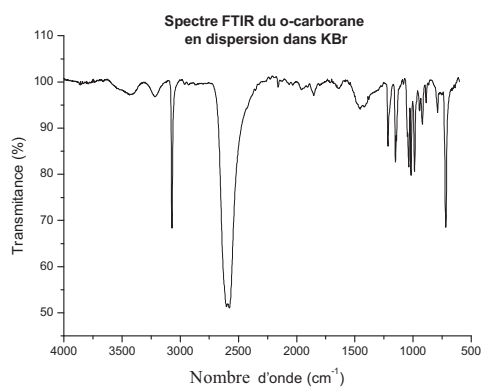


FIG. 4.18: Spectre FTIR de l'ortho-carborane

4.3. CARACTÉRISATION OPTIQUE

4.3.3 Caractérisation par spectrométrie UV - visible des scintillateurs

Les scintillateurs sont des solides translucides dans le domaine spectral du visible. Ces polymères ont une structure amorphe. Compte tenu de la présence de nombreux noyaux benzéniques, certains centres colorés jaunes peuvent apparaître résultant soit d'une réaction d'oxydation survenue lors d'un trop fort chauffage durant la fabrication soit d'un vieillissement du scintillateur dû à une dose cumulée d'irradiation trop importante.

La caractérisation U.V. - visible permet de vérifier que la transparence du scintillateur à sa propre longueur d'onde d'émission est suffisante pour assurer une transmission correcte du signal lumineux.

L'appareil utilisé pour ces mesures est un Spectromètre UV/Vis/NIR Perkin-Elmer Lambda 19. L'échantillon à analyser est plongé dans une cuve aux parois parfaitement parallèles et remplie d'éthanol. Ce dispositif permet de s'affranchir des problèmes d'adaptation d'indice et de réflexions parasites. Le spectre **4.19** montre une forte absorption de la lumière pour des longueurs d'onde inférieures à 400 nm à cause de la présence des molécules de p-terphényl et de POPOP, puisque ce sont les domaines d'absorption de ces molécules. L'épaisseur de l'échantillon analysé est de 5,1 cm. La transmission est de 80 % pour les parois de la cuve et l'éthanol. Ainsi, l'absorption à 425 nm réellement due au scintillateur est de 25 % pour 5,1 cm de scintillateur plastique dopé au Bore.

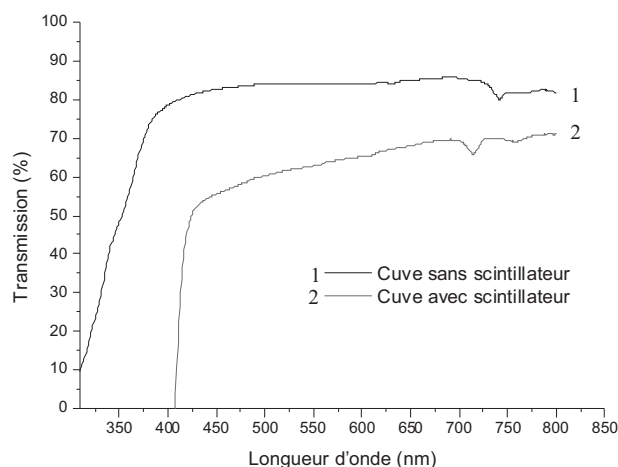


FIG. 4.19: Mesure de la transmission optique d'un scintillateur plastique dopé au bore.

4.3.4 Mesure de la longueur de demi-atténuation

La longueur de demi-atténuation est la distance pour laquelle l'intensité d'un faisceau lumineux traversant le matériau étudié est divisée par deux. Cette donnée varie avec la longueur d'onde au même titre que l'absorption dans le matériau étudié. Nombre de

fabricants de scintillateurs donnent une valeur de la longueur de demi atténuation pour un laser HeNe à 632 nm. Or la véritable donnée physique pertinente est l'autoabsorption du matériau, c'est à dire la capacité du matériau à transmettre les photons qu'il génère (longueur d'onde d'émission autour de 425 nm).

Deux méthodes ont été utilisées pour mesurer cette absorption. La première consiste à placer le scintillateur excité par un laser à 411 nm dans une sphère intégratrice. La seconde met en oeuvre le spectromètre dont l'utilisation est présentée dans le paragraphe précédent.

Méthode utilisant la sphère intégratrice

La longueur de demi-atténuation a pu être calculée par une méthode de mesure d'absorption utilisant une sphère intégratrice de lumière. Le dispositif expérimental est présenté sur la figure 4.20 : Un laser émettant à 411 nm (puissance égale à 4 mW) est atténué ou non avec une lame d'une densité optique (D.O.) de 1,58. Puis le faisceau pénètre par un trou de 2 mm de diamètre dans une sphère intégratrice de type TRC-060-SL (Labsphere Ltd) dont l'intérieur est recouvert d'un revêtement blanc très diffusant du type WRC-680 (Labsphere Ltd.) [Marin 00].

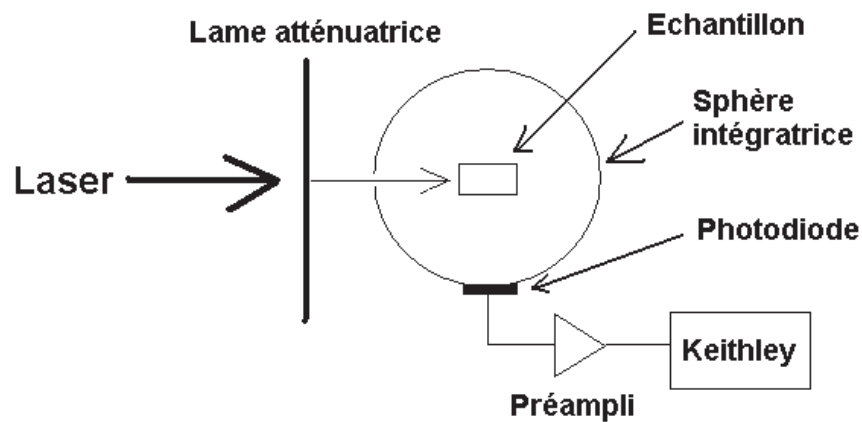


FIG. 4.20: Dispositif utilisé pour mesurer l'atténuation du matériau scintillant

A l'intérieur de la sphère, une photodiode Hamamatsu S2281 permet de mesurer la quantité totale de lumière reçue. Cette photodiode a été étalonnée, ce qui permet de corréler le courant délivré par la photodiode et l'éclairement qu'elle subit. L'objectif de cette méthode est de mesurer l'absorption du matériau. Pour ce faire, trois mesures ont été réalisées.

- La première sans l'échantillon présent dans la sphère (ce qui permet de mesurer le bruit de fond),

4.3. CARACTÉRISATION OPTIQUE

- La seconde avec l'échantillon présent dans la sphère mais hors du trajet du faisceau laser (seule la lumière diffusée sur les parois internes de la sphère et la lumière diffusée puis absorbée par le barreau sont prises en compte),
- Le troisième essai avec l'échantillon présent dans le faisceau laser (la lumière absorbée provenant directement du faisceau ainsi que la lumière diffusée sont prises en compte).

En divisant la seconde mesure par la troisième, la lumière diffusée par le barreau est éliminée [Marin 00]. Le coefficient d'absorption du matériau en volume peut être ainsi calculé, indépendamment de l'état de surface de l'échantillon. L'expression de l'atténuation est donnée par la loi de Beer-Lambert (équation 4.11) :

$$I = I_0 \cdot \exp(-\mu \cdot x) \quad (4.11)$$

- I_0 et I sont respectivement les intensités incidente et transmise par le milieu analysé.
- μ est le coefficient d'absorption du milieu.
- x est la distance parcourue par le faisceau lumineux dans le milieu étudié.

Puisque la grandeur pertinente est la longueur au bout de laquelle I_0 est divisé par 2, c'est $x_{\frac{1}{2}}$ qui est donné par la relation 4.12.

$$\frac{\ln(2)}{\mu} = x_{\frac{1}{2}} \quad (4.12)$$

En tenant compte du fait que l'échantillon étudié fait 27 mm de long, μ est égal à $4,54 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$. En conclusion, la longueur de demi atténuation calculée par cette méthode est de $15 \pm 4 \text{ cm}$.

Méthode utilisant le spectromètre

Cette méthode utilise le spectre présenté sur la figure 4.19. L'appareillage mis en oeuvre est un Spectromètre UV/Vis/NIR Perkin-Elmer Lambda 19. Le dispositif expérimental consiste à placer dans une cuve un échantillon de scintillateur plastique dopé au Bore. Cet échantillon étant cylindrique, une cuve aux parois planes et parallèles a été utilisée afin de compenser les problèmes de focalisation (le scintillateur est équivalent à une grosse lentille cylindrique compte tenu de sa géométrie cylindrique) et de réflexion lumineuse due à la géométrie de l'échantillon. Cette cuve est remplie d'éthanol, ce qui permet d'avoir une bonne adaptation d'indice entre les parois de la cuve en polystyrène et le scintillateur étudié. De plus, les diffusions dues aux imperfections du polissage sont "gommées" par l'utilisation de l'éthanol.

Le 100 % de la transmission est donné par la courbe de la cuve seule remplie d'éthanol. Compte tenu de ce changement de référence, l'ensemble cuve - éthanol - scintillateur montre une transmission de 75 % pour un échantillon qui fait 51 mm de diamètre. Dans

le dispositif expérimental présenté, le pourcentage de photons réfléchis est donné par la relation **4.13** qui tient compte des deux dioptries formés par les deux parois de la cuve. L'indice de l'air étant de 1 et celui du milieu de 1,6, le facteur de transmission (T) est donc égal, en théorie, à 89,4 %.

$$T = \frac{(4n_1n_2)^2}{(n_1 + n_2)^4} \quad (4.13)$$

En utilisant la relation **4.11**, cette série de mesure donne un coefficient $\mu = 3,4 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$. La longueur de demi-atténuation ($x_{\frac{1}{2}}$) vaut alors $20 \pm 2 \text{ cm}$ par cette méthode.

Résultats

En conclusion, les deux méthodes utilisées donnent des résultats comparables, aux erreurs expérimentales près. L'incertitude associée à la mesure réalisée grâce à la méthode utilisant le spectromètre est plus faible que celle associée à la méthode utilisant la sphère intégratrice. Cette différence provient intrinsèquement de la méthode utilisée. En effet, les mesures utilisant la sphère intégratrice varie en fonction de l'intensité du faisceau laser incident alors que les mesures réalisées à l'aide du spectromètre se sont révélés beaucoup plus stable.

Ainsi, les valeurs de la longueur de demi-atténuation pour une longueur d'onde de 425 nm sont, selon la méthode, comprise entre 15 cm et 20 cm. Cependant, ces valeurs sont loin de celles données par les fabricants, puisque situées autour des longueurs d'onde d'émission des scintillateurs. En effet, la longueur de demi-atténuation est comprise entre 80 et 180 cm à 632 nm selon le scintillateur analysé. Les valeurs mesurées ici sont plus pertinentes dans leur sens physique que celles données par les catalogues des fabricants car les photons générés par le scintillateur ont une longueur d'onde située autour de 425 nm et non 632 nm.

4.3.5 Caractérisation par spectrofluorimétrie

Cette technique d'analyse permet de déterminer le spectre de fluorescence du matériau étudié. Elle utilise une lumière excitatrice dont la longueur d'onde déterminée, en l'occurrence ici 380 nm, et mesure à 90° la lumière qui est réémise par le matériau en sélectionnant, par un réseau, la longueur d'onde analysée de la lumière réémise. L'appareil utilisé pour cette mesure est un spectrofluorimètre Hitachi F4500 "Fluorescence Spectrophotometer".

Il apparaît clairement sur la figure **4.21** que le spectre d'émission de la lumière d'un scintillateur plastique ne dépend pas de la présence ou de l'absence de dopage. La différence d'amplitude observée sur le spectre s'explique en partie par des dimensions d'échantillons différentes et par le fait que le dopage implique une atténuation de la lumière plus importante à cause des phénomènes de "quenching" induit par les molécules de dopants, comme l'ortho-carborane.

4.4. ANALYSE RMN

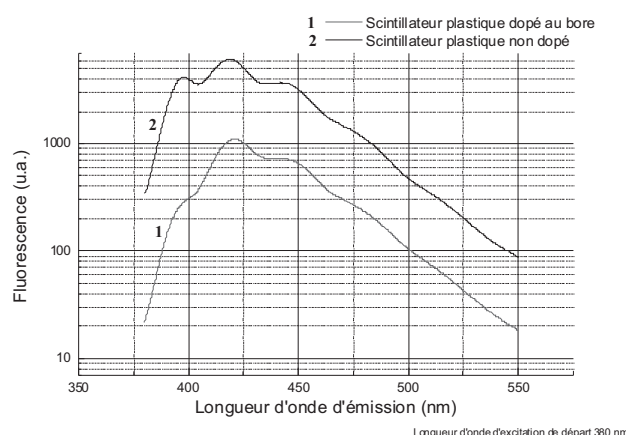


FIG. 4.21: Comparaison des spectres de fluorescence de scintillateurs plastiques dopés ou non au bore

4.4 Analyse RMN

La spectroscopie RMN fournit une preuve de l'environnement structural des noyaux individuels d'hydrogène dans le cas de la RMN ^1H . Elle donne également une information extrêmement détaillée concernant l'agencement structural d'une molécule.

Les mesures par Résonance Magnétique Nucléaire (R.M.N.) ont été réalisées au centre de recherche sur les Thiopolymères de l'ISMRA (Institut des Sciences de la Matière et du Rayonnement) à CAEN. L'appareil RMN utilisé est un Brücker DRX 400MHz avec une sonde 5 mm BBOBB. La fréquence principale de l'oscillateur interne détermine la qualité du spectromètre RMN. Plus cette fréquence de résonance est importante, meilleure est la séparation entre les n-tuplés signaux provenant des noyaux d'hydrogène ayant des voisinages identiques.

Le solvant utilisé est soit le toluène deutéré ($\text{C}_6\text{D}_5\text{CD}_3$) soit le chloroforme deutéré (CDCl_3). Une goutte de Tétraméthylsilane ($(\text{CH}_3)_4\text{Si}$ ou TMS) est ajoutée à ces solvants. Ce composé permet ainsi de fixer, par convention, le zéro des déplacements chimiques sur l'échelle des abscisses.

Pour le monomère de styrène (Cf. figure 4.22 et 4.23), les cinq protons aromatiques sont pratiquement équivalents et sortent à 7,2 ppm. Les protons vinyliques donnent les 8 pics entre 5 et 7 ppm qui forment un "toit". Cette structure s'explique parfaitement en faisant intervenir la constante de couplage entre 2 protons vicinaux ($J_{2-3} = 2 \text{ Hz}$) entre 2 protons en position cis ($J_{1-2} = 10 \text{ Hz}$) et entre 2 protons trans ($J_{1-3} = 17 \text{ Hz}$).

Cette structure disparaît dans le spectre du polystyrène (Cf. figure 4.27 et 4.23). Les protons en position b du cycle (Cf. tableau 4.23) ont le même environnement magnétique et donnent un signal vers 7 ppm. L'intégrale de ce pic correspond d'ailleurs à 3 protons. Les protons en position a sont couplés avec les protons en position c de la chaîne en méta.

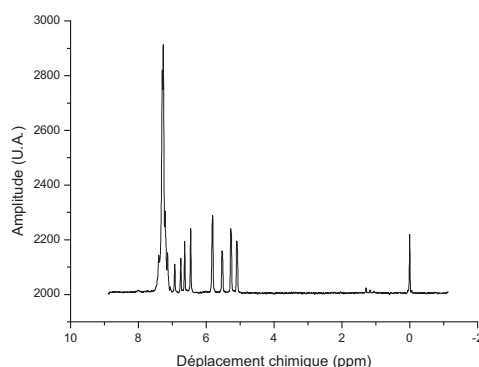


FIG. 4.22: Spectre RMN ^1H du styrène réalisé dans du toluène deutéré

Ils devraient donner un signal plus résolu mais dans le cas d'un polymère, en raison de la viscosité du milieu, la résolution est moins bonne. Le signal des 2 protons apparaît à 6,5 ppm. Les protons de la chaîne principale en position c et d donnent un massif centré à 1,5 ppm et dont l'intégration correspond à 3 protons.

Le spectre RMN du proton de l'ortho-carborane (Cf. figure 4.25) montre une structure oscillatoire entre 1 et 3 ppm. Cette structure est caractéristique de cette molécule. Elle provient du couplage entre les protons C-H et B-H de la molécule.

Le spectre RMN du proton du POPOP n'a pas été réalisé. En effet, compte tenu de sa faible concentration dans le scintillateur final, moins de 1 % en masse, sa détection par la technique RMN est irréalisable avec les appareils utilisés.

Le spectre du PPP a été réalisé bien que celui-ci soit difficilement soluble dans le toluène. Il présente un seul pic à 7,5 ppm. Les protons aromatiques sont déblindés par rapport aux protons aromatiques du polystyrène à cause des trois noyaux phényle liés entre eux par une liaison C-C.

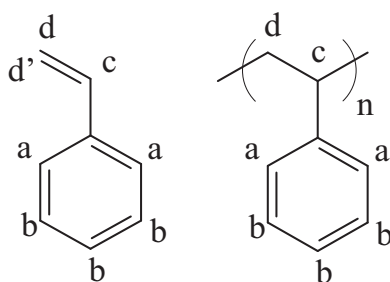


FIG. 4.23: Formule du styrène et du polystyrène

Une analyse RMN permet de déterminer la structure chimique des éléments mais également les éventuelles proportions relatives des uns par rapport aux autres. Le spectre RMN d'un scintillateur non dopé a été réalisé (Cf. spectre 4.26). Seules les structures du

4.4. ANALYSE RMN

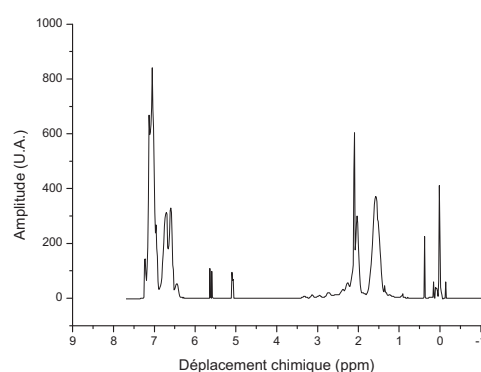


FIG. 4.24: Spectre RMN ^1H de l'orthocarborane dissout dans du polystyrène réalisé dans du toluène deutéré

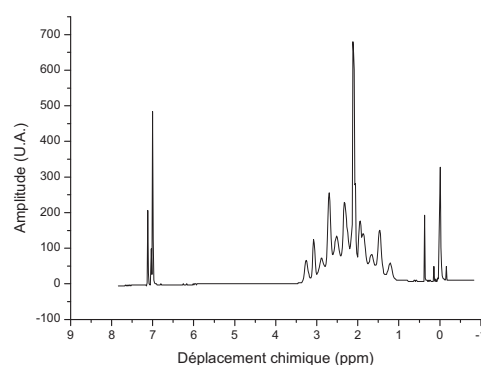


FIG. 4.25: Spectre RMN ^1H du o-carborane réalisé dans du toluène deutéré

polystyrène et du p-terphényl apparaissent. Par contre, l'orthocarborane mélangé avec le polystyrène apparaît avec sa structure oscillatoire caractéristique entre 1 et 3 ppm (Cf. spectre 4.24). L'analyse RMN d'un scintillateur plastique dopé au Bore conduira donc à la présence de cette structure oscillatoire caractéristique. Cette méthode permet donc de signer, au même titre que la spectroscopie infra-rouge, la présence d'ortho-carborane dans un scintillateur plastique dopé.

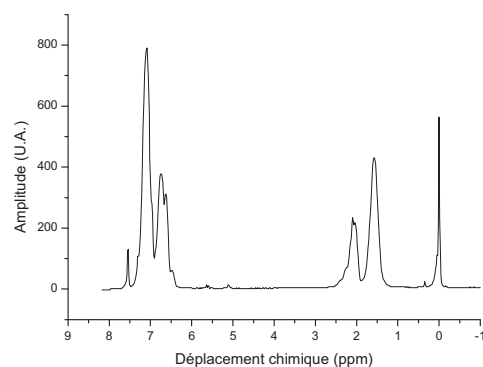


FIG. 4.26: Spectre RMN ^1H du polystyrène mélangé à du p-terphényl et du POPOP réalisé dans du toluène deutéré

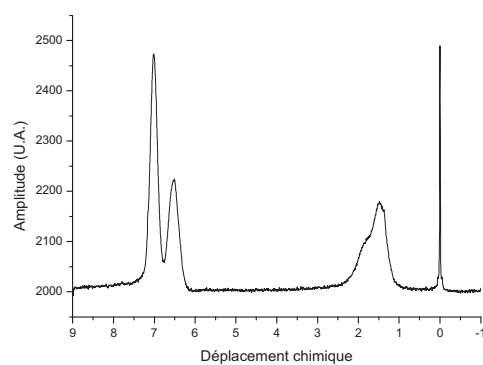


FIG. 4.27: Spectre RMN ^1H du polystyrène pur réalisé dans du chloroforme deutéré CDCl_3

Chapitre 5

Mise en oeuvre du scintillateur

La production de lumière est le phénomène de base de la scintillation. Cependant, à cause de la faiblesse des rendements lumineux de conversion¹, il faut être en mesure de recueillir le maximum de photons générés initialement et de les convertir avec un rendement le meilleur possible en signal électrique exploitable.

5.1 Couplage optique

C'est au niveau des interfaces que beaucoup de photons sont perdus. En effet, en l'absence d'un couplage efficace, environs 8 % des photons sont réfléchis au niveau des interfaces (scintillateur-air puis air-photocathode). En utilisant une graisse optique, la transition entre ces deux milieux dont les indices sont distants est progressive, ce qui favorise la propagation des photons jusqu'à la photocathode. En effet, l'indice de la photocathode est de 1,5 à 400 nm [Photonis 00] alors que le scintillateur a un indice à 425 nm de 1,61. L'adaptation d'indice entre ces deux milieux est réalisée par la graisse optique.

Afin de s'assurer que la graisse optique utilisée est bien transparente dans les gammes de longueurs d'onde de travail, un spectre UV - visible a été réalisé. A cette fin, une fine couche de graisse de 0,1 mm d'épaisseur a été étalée entre deux lamelles de verre. La coupure sur le spectre vers 300 nm est due au verre et non à la graisse.

La courbe 2 du spectre **5.1** montre une transmission comprise entre 80 et 85 %. Ces valeurs de transmission doivent être pondérées d'un facteur 1,08. En effet, il faut tenir compte des 4 % de perte de transmission liée aux réflexions réalisées sur chaque dioptre créé par les lamelles de verre. Il apparaît finalement que 86 % à 92 % des photons arrivant sur le dispositif expérimental sont transmis dans la gamme de longueur d'onde 400 - 500 nm. Lors de l'utilisation de ce type de graisse pour le couplage optique entre le photomultiplicateur et le scintillateur, l'atténuation se situe autour de 10 %, pour une épaisseur de 1 mm. Cette dernière doit être la plus faible possible afin de limiter au maximum l'atténuation de la lumière dans la graisse.

¹Par exemple, la capture d'un neutron thermique ne génère qu'environ 400 photons de scintillation dans un scintillateur plastique dopé au Bore

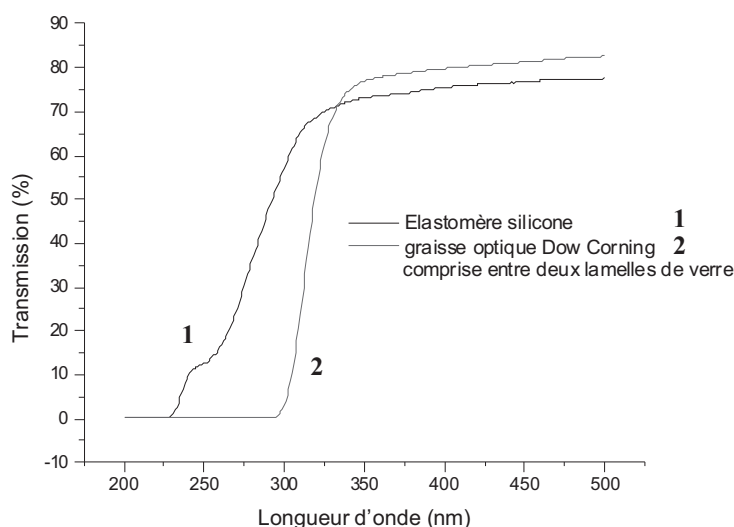


FIG. 5.1: Comparaison des propriétés de transmission de la résine élastomère et de la graisse Dow Corning utilisée.

En lieu et place de la graisse silicone, il est possible d'utiliser des colles époxy ayant de très bonnes propriétés optiques tant sur le plan de la transparence que sur le plan de l'adaptation d'indice. Néanmoins, le montage est réalisé une fois pour toute, ce qui exclut toute réutilisation du photomultiplicateur.

Le couplage entre le scintillateur et la fenêtre d'entrée de la photocathode peut également utiliser une résine élastomère silicone RTV141 (Prolabo). Ce produit a la propriété d'avoir une très bonne adhésion par effet ventouse sur les surfaces exemptes de défauts. L'adaptation d'indice entre le scintillateur et la photocathode est réalisée par cette résine après avoir chassé l'air présent entre les deux dioptries entourant le disque de résine élastomère. Ce produit étant un solide, il ne coule pas, contrairement à la graisse silicone. La stabilité dans le temps du montage scintillateur - résine - photocathode est donc meilleure que celle du montage mettant en oeuvre la graisse optique. En effet, ces graisses silicones ne peuvent être utilisées à haute température, car leur viscosité diminue fortement avec la température au point qu'elles deviennent trop fluides pour maintenir une continuité optique entre la photocathode et le scintillateur. Or les phénomènes d'échauffement de la photocathode sont fréquents sur les photomultiplicateurs fonctionnant sur de longues périodes.

Le spectre 5.1 permet de comparer les propriétés de transparence de la graisse silicone et de l'élastomère pour respectivement une épaisseur de 1 mm et de 2 mm.

Une fois le scintillateur couplé, l'ensemble doit être isolé optiquement de la lumière du jour par un dispositif mécanique approprié.

5.2 Guide lumière utilisé

Les guides de lumière qui ont été développés pour le dispositif de mesures des multiplicités neutroniques sont à base d'Altuglass. Il s'agit en fait de Plexiglass ou PMMA, polyméthacrylate de méthyle. La figure 5.2 montre que ce type de matériau convient pour réaliser des guides de lumière. En effet, le spectre d'émission des scintillateurs (entre 400 et 450 nm) correspond au minimum d'absorption pour ce matériau. Cette absorption est inférieure à 4 % pour une épaisseur de 8 mm.

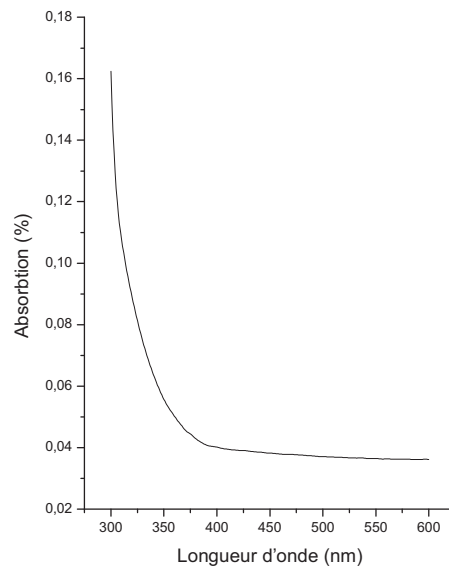


FIG. 5.2: Spectre d'absorption de l'Altuglass

5.3 Le photomultiplicateur XP2020

Le photomultiplicateur utilisé est un XP2020 de la société Photonis Imaging Sensor. Les performances à la fois en terme de gain, de linéarité de la réponse et de rapidité de ce tube sont en adéquation avec notre application. La sensibilité de la cathode est de l'ordre de $12 \mu\text{A}/\text{lmF}$ (Lumen Filtré), ce qui correspond environ à $80 \mu\text{A}/\text{lm}$. Le gain de $3 \cdot 10^7$ est obtenu pour une tension d'environ 2200 volts. Pour ce type de tube, le temps de montée est de l'ordre de 1,5 ns pour une alimentation haute tension de 2500 Volts [Moszynski 93]. Le gain dérive de 1 % au bout de 16 heures [Photonis 00].

Une coupe schématique du principe de fonctionnement d'un photomultiplicateur est donnée sur la figure 5.3. L'intérêt des photomultiplicateurs réside dans le gain de l'amplification (gain possible jusqu'à $3 \cdot 10^7$).

La fenêtre d'entrée est constituée de borosilicate (Pyrex) qui a un indice de 1,50 à 400 nm. Compte tenu de cet indice et de celui du scintillateur, la graisse optique permet

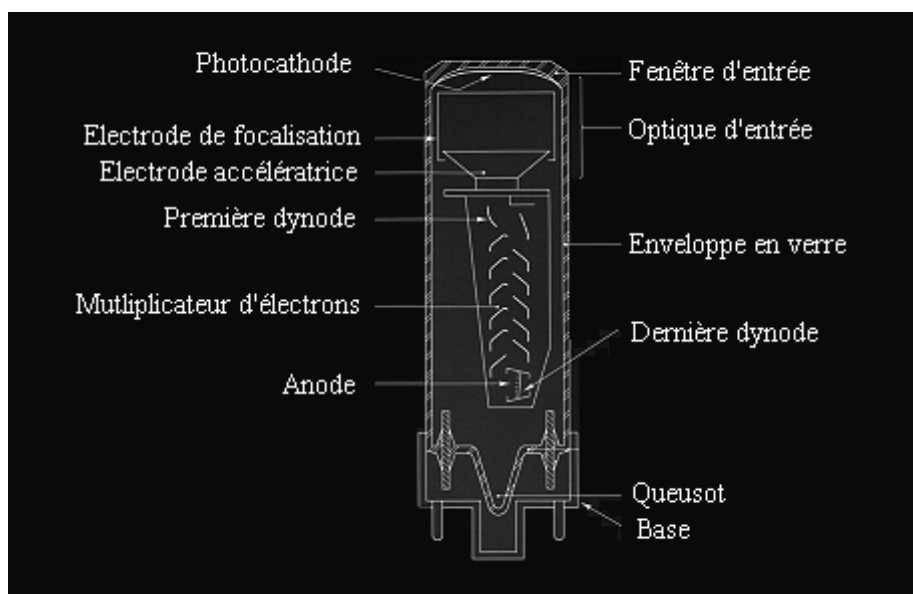


FIG. 5.3: Coupe schématique du fonctionnement d'un photomultiplicateur [Photonis 00].

une adaptation progressive de l'indice et évite ainsi les problèmes de sauts d'indice brutaux. La limite de coupure à 90% se situe à 270 nm, bien en deçà des longueurs d'onde d'émission des scintillateurs auxquels nous nous intéressons.

La photocathode de ce tube est de type bialkali A. La figure 5.4 présente la courbe de réponse de ce type de photocathode en fonction de la longueur d'onde de la lumière incidente. Il apparaît clairement que pour ce type de photocathode, le pic de rendement quantique se situe autour de 420 nm. Ce rendement quantique vaut environ 10 % à 425 nm [Photonis 00] (Courbe 1 de la figure 5.4).

Le pont diviseur utilisé est le VD124k qui permet un compromis entre la vitesse et la linéarité. La distribution de la tension est progressive tout au long des 12 dynodes. La figure 5.5 présente le schéma électronique de ce pont diviseur. La résistance globale du pont diviseur entre la première dynode et l'anode vaut 2,15 M Ω . L'ensemble de ce pont diviseur est constitué d'éléments purement passifs.

La tension de service peut aller jusqu'à 3000 Volts. Dans le cadre de cette étude la tension du photomultiplicateur a été fixée à 2000 Volts. A cette tension, les signaux en provenance des gamma ou des neutrons ont une amplitude suffisante pour attaquer directement les amplificateurs rapides de mise en forme. Aucun système de stabilisation de gain n'a été mis en oeuvre. En effet, la majorité des expériences a été menée sur des temps inférieurs à une journée. Sur de tels laps de temps, le gain du photomultiplicateur peut être considéré comme stable, après une période de chauffe préalable de l'appareillage [Photonis 00]. En effet, le courant d'obscurité² diminue fortement durant la première demi-

²Dans l'obscurité la plus totale, le photomultiplicateur continue d'émettre un faible courant qui est

5.3. LE PHOTOMULTIPLICATEUR XP2020

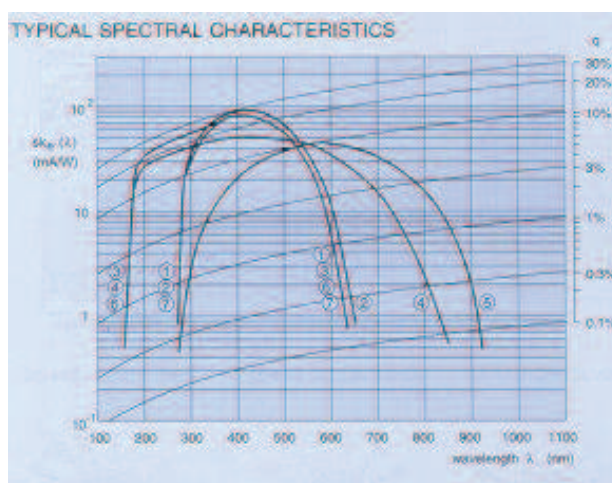


FIG. 5.4: Réponse de différentes photocathodes en fonction de la longueur d'onde de la lumière incidente [Photonis 00].

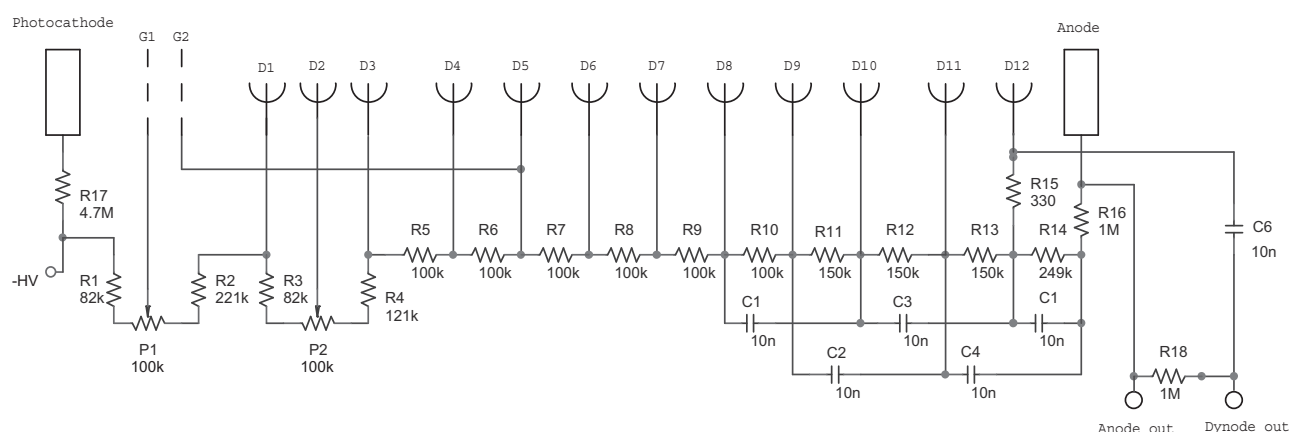


FIG. 5.5: Schéma électronique du pont diviseur VD124k

heure suivant la mise sous tension.

Les photomultiplicateurs sont très sensibles aux champs magnétiques parasites, compte tenu de la focalisation très précise des électrons sur les dynodes. Afin de s'affranchir de ce type de problème, le tube a été utilisé dans une structure mécanique en acier incluant un

qualifié de courant d'obscurité. Le courant d'obscurité est la résultante de trois phénomènes principaux.

Le plus important provient du courant de fuite qui existe entre les électrodes et le verre du photomultiplicateur.

L'émission d'électrons par effet thermionique de la photocathode constitue une autre source d'électrons pour le courant d'obscurité.

L'émission par effet de champ provient des impuretés éventuellement présentes à la surface des électrodes. Compte tenu des forts champs électriques, il y a émission à partir de ces impuretés d'électrons qui participent également au courant d'obscurité global.

blindage en mumétal (alliage de Ni(77%), Fe(14%), Cu (5%) et Mo (4%)).

En conclusion, l'ensemble constitué de ce tube photomultiplicateur et du pont diviseur a des performances en adéquation avec les exigences des expériences menées durant cette étude.

5.4 Revêtements utilisés

5.4.1 Présentation

Le scintillateur doit être isolé optiquement du milieu extérieur par un revêtement adapté. Divers types de revêtements peuvent être envisagés afin d'améliorer la quantité de photons susceptibles d'arriver au niveau de la photocathode du tube du photomultiplicateur. Il existe deux types de familles de revêtements, les réflecteurs (typiquement l'Aluminium) et les diffusants (typiquement le Téflon ou les peintures à base d'oxyde de titane TiO_2 ou de sulfate de baryum BaSO_4).

5.4.2 Les réflecteurs

Pour les réflecteurs, la propriété utilisée est la réflexion totale et métallique à l'interface de contact entre le matériau scintillant et le revêtement. Le revêtement réflecteur le plus utilisé est à base de feuilles d'Aluminium d'épaisseur fine (de l'ordre de $100\ \mu\text{m}$) entourant le scintillateur. L'objectif est de profiter de la réflexion métallique pour que les photons susceptibles de sortir du barreau scintillant soient réfléchis par le métal. Cependant ce type de feuille ne peut pas être collé parfaitement bien au scintillateur, ce qui entraîne, pour les photons, une sortie dans l'air avant d'être réfléchis par l'Aluminium. La structure du dispositif optique est donc la suivante : scintillateur - couche d'air - Aluminium.

Les photons en incidence satisfaisant les conditions de réflexion totale, sont conservés à l'intérieur du barreau. Les autres photons sortent du barreau et sont réfléchis par l'Aluminium. Selon l'angle suivant lequel ils rencontrent de nouveau la face d'entrée du scintillateur, les photons pénètrent à nouveau dans le scintillateur ou restent guidés par l'Aluminium dans la couche d'air entre l'aluminium et la surface du scintillateur jusqu'à la photocathode.

Un dépôt d'Aluminium déposé par évaporation sous vide peut être envisagé pour supprimer le problème de la couche d'air présente entre l'Aluminium et la surface du scintillateur. Une réflexion parfaite au niveau de l'Aluminium déposé semblerait envisageable. Or les résultats obtenus sont très différents en fonction du procédé de dépôt utilisé. Deux types de machine sont disponibles au laboratoire pour réaliser des évaporations d'Aluminium sous vide. Les machines peuvent utiliser soit un canon à électrons pour vaporiser une charge d'Aluminium, soit le passage d'un courant intense dans la charge d'Aluminium, ce qui entraîne une évaporation thermique par chauffage.

5.4. REVÊTEMENTS UTILISÉS

- La première méthode détériore de façon notable le matériau. Compte tenu de l'énergie des électrons provenant du canon à électrons, ceux-ci vont produire par rayonnement de freinage (ou Bremstrahlung) des rayons X de faibles énergies dans la charge d'Aluminium. La quantité de rayons X présents dans l'enceinte est suffisante ³ pour induire un vieillissement prématuré des quelques premiers mm du scintillateur ce qui est visible par l'apparition de centres colorés jaunes caractéristiques de réactions entre les radicaux libres formés par l'irradiation et les noyaux benzéniques composant le scintillateur. Cette méthode de dépôt est donc à proscrire complètement pour les scintillateurs organiques.
- La seconde méthode ne génère pas de rayons X. Par contre, les gouttelettes d'Aluminium qui se déposent sur la surface du scintillateur vont la faire fondre localement. En effet, l'Aluminium est liquide à 660°C à pression atmosphérique alors que dans les mêmes conditions de pression, le scintillateur fond à 240°C . Il apparaît donc une surface tourmentée au niveau de l'interface entre la couche d'Aluminium et le scintillateur suite à une fusion locale de ce dernier. Bien que les photons soient conservés à l'intérieur du barreau scintillant, les angles de réflexion ne sont alors plus parfaits. Les photons vont donc parcourir des longueurs plus importantes avant d'atteindre la photocathode, ce qui augmente considérablement la probabilité qu'ils soient absorbés par le matériau.

5.4.3 Les diffuseurs

Les propriétés optiques mises en oeuvre dépendent de l'épaisseur et du type de revêtement utilisés. Si celui-ci a une épaisseur relativement faible, il s'agit alors de réflexion et de saut d'indice au niveau de l'interface. Si par contre, l'épaisseur est supérieure à quelques μm , c'est le principe optique de la diffusion qui est mis en oeuvre. Dans le cas de la diffusion, lorsqu'un photon arrive au contact de l'interface, il peut être diffusé de façon équiprobable dans les 2π stéradians d'angle solide. A la lumière de cette propriété, il apparaît nécessaire d'avoir à l'autre extrémité du scintillateur soit un second photomultiplicateur, soit un autre dépôt diffusant, afin d'éviter de perdre 50 % des photons qui auront diffusés sur les parois du scintillateur dans la direction opposée à celle du photomultiplicateur.

Les feuilles de Téflon (plus exactement de polytétrafluoroéthylène ou PTFE) peuvent être utilisées. Compte tenu du facile chargement en électricité statique de ce type de matériaux, la feuille colle parfaitement au barreau scintillant. C'est cette dernière solution qui a été retenue. Elle a l'avantage d'être simple à mettre en oeuvre et de donner des résultats satisfaisants. De plus, outre les propriétés de diffusion de la lumière de ce polymère blanc opaque, il dispose d'un indice optique de 1,38. Or l'angle de réflexion totale dépend du rapport entre l'indice du scintillateur et l'indice du revêtement.

³Le débit de dose a été évalué entre 10 à 20 kGy.h^{-1} par simulation MCNP (Monte Carlo N-Particles) en tenant compte de l'ensemble des paramètres physiques de la machine de pulvérisation par canon à électrons.

$$\theta_{\max} = \arcsin \left(\frac{n_{\text{revêtement}}}{n_{\text{scintillateur}}} \right) \quad (5.1)$$

En appliquant la formule 5.1, tous les photons, compris dans un angle entre 90 et 35° par rapport à la normale, sont réfléchis totalement à la surface du scintillateur. Seuls les photons compris entre 90 et 51° par rapport à la normale sont dans les conditions de réflexion totale pour le cas où le scintillateur est au contact direct avec l'air.

5.4.4 Expérience de caractérisation

Une mesure, réalisée à l'aide du dispositif utilisé pour les mesures de caractérisation alpha et proton (Cf. figure 5.6), a permis de cerner l'influence du revêtement sur la qualité des résultats finaux (Cf. figure 5.7). Les paramètres tant électroniques (gain de l'amplificateur et constante d'intégration) que physiques (temps d'acquisition, présence du vide primaire et géométrie du dispositif) sont tels que l'ensemble de ces mesures a été réalisé dans les mêmes conditions expérimentales.

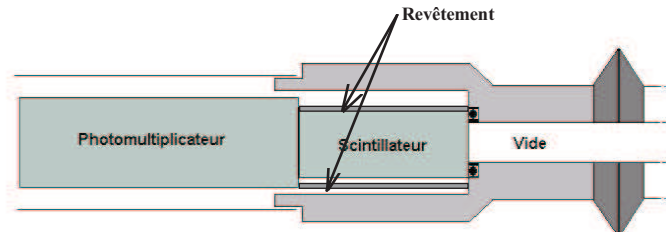


FIG. 5.6: Dispositif expérimental utilisé pour tester les différents types de revêtements

Le scintillateur mis en oeuvre est un scintillateur plastique non dopé AMCRYS-H (UPS-99 qui est équivalent au NE102). La base de ce scintillateur est du polystyrène. La source radioactive utilisée est une source alpha d'Américium 241 possédant une activité de 5,2 kBq.

A la vue de la figure 5.7, plusieurs remarques s'imposent :

- 1 - Le dépôt d'Aluminium, quelque soit la méthode de dépôt, n'est pas une bonne solution pour la réalisation d'un réflecteur.
- 2 - Les revêtements diffusants à base de TiO_2 ou de Téflon sont meilleurs.
- 3 - Il faut noter que la courbe "rien" est biaisée car l'intérieur du dispositif mécanique est de l'acier inox poli qui est un très bon réflecteur. L'épaule du pic observable vers les faibles canaux peut s'expliquer par les parcours plus longs que doivent réaliser les photons avant d'arriver sur la photocathode, ce qui a pour effet d'entraîner une atténuation plus importante des photons émis lors de l'interaction des alpha avec le scintillateur.

5.4. REVÊTEMENTS UTILISÉS

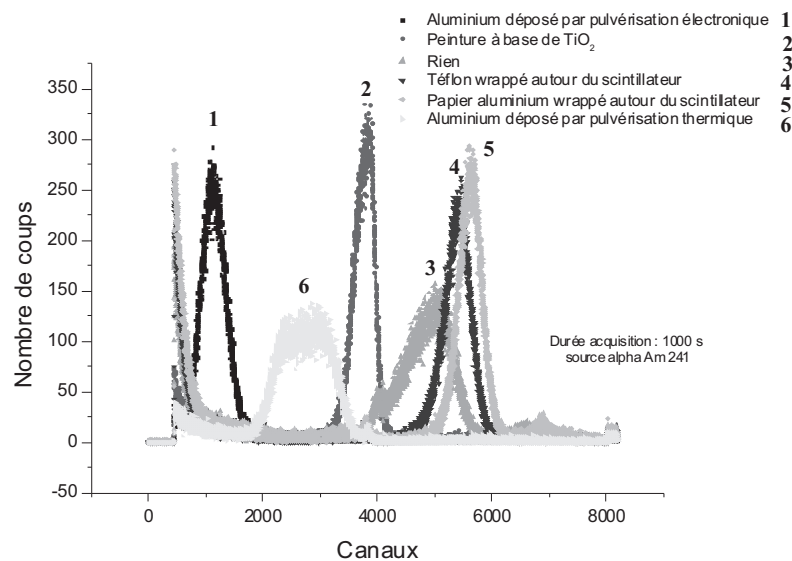


FIG. 5.7: Influence du revêtement sur la quantité de photons recueillis. Les canaux sont proportionnels aux nombres de photons recueillis.

5.4.5 Conclusions

Les peintures à l'oxyde de titane ou au sulfate de baryum (Cf. figure 5.8) donnent de bons résultats si elles sont correctement appliquées à la surface du scintillateur. La meilleure méthode semble être le pistolet à peinture. L'étalement au pinceau est trop approximatif et ne permet pas d'être certain qu'il n'y ait pas eu de minces poches d'air emprisonnées entre la peinture et la surface du scintillateur. En effet, ceci nuirait aux bonnes propriétés de diffusion du revêtement en induisant deux dioptries supplémentaires. L'utilisation de ce type de revêtement impose la mise en place d'une protection mécanique supplémentaire car il est très fragile et vieillit mal.

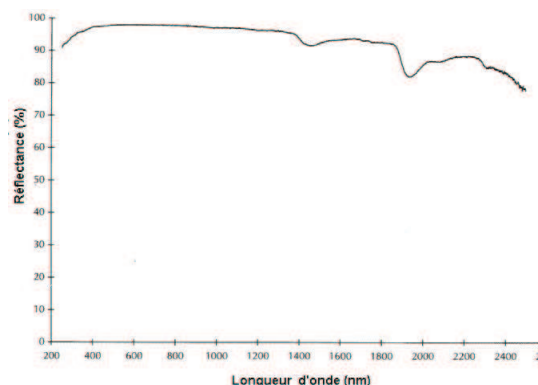


FIG. 5.8: Réflectance du matériau diffusant Labsphere WRC-680 à base d'oxyde de Baryum.

De part le principe de la diffusion, ces revêtements imposent des chemins optiques qui sont en moyenne plus longs que ceux obtenus pour des réflecteurs comme le papier Aluminium. Cet allongement du parcours optique entraîne une atténuation plus importante des photons générés, ce qui explique la position du pic pour la peinture à base de TiO_2 . La position du pic alpha obtenu pour un revêtement à base de TiO_2 doit être également décalée vers les canaux de plus fortes valeurs pour tenir compte des propriétés de diffusion de la lumière de l'oxyde de Titane. En effet, en moyenne, environ 50 % des photons générés en direction de la photocathode et qui arrivent sur ce revêtement repartent dans la direction d'où ils proviennent, d'où une évidente perte de comptage au niveau du photomultiplicateur dans le dispositif expérimental présenté sur la figure 5.6. En effet, afin de permettre aux particules alpha de pénétrer au sein du scintillateur, la face d'entrée du scintillateur, qui est sous vide, est vierge de tout revêtement.

Ce problème de collection de lumière peut être contourné lors des expériences de mesures neutroniques. En effet, les neutrons n'étant pas chargés, leurs interactions avec la matière ont lieu au sein même du scintillateur. Dès lors, il est possible d'améliorer le rendement de collection des photons de scintillation en installant deux photomultiplicateurs en vis à vis aux extrémités du scintillateur, ou, si un seul et unique photomultiplicateur doit être utilisé, en recouvrant également l'extrémité non instrumentée du scintillateur par de la peinture diffusante. Lors de ces expériences de caractérisation, il n'a pas été possible de tester cette hypothèse de travail à cause du faible parcours des alpha dans la matière (environ quelques dizaines de μm) et de la nécessité de travailler sous un vide primaire pour que les alpha induisent un signal exploitable en interagissant avec le scintillateur.

En conclusion, parmi les revêtements utilisés, deux peuvent être utilisés.

- 1 - Le papier Aluminium donne les meilleurs résultats pour les réflecteurs, puisqu'il permet de profiter des réflexions totales à l'interface scintillateur - air, et, d'avoir les photons sortant réfléchis et re-dirigés à 100 % en direction du scintillateur.
- 2 - Les peintures diffusantes permettent de bien canaliser les photons dans le scintillateur, si elles sont correctement appliquées à la surface du scintillateur. Les feuilles de Téflon peuvent également être utilisées avec une perte de quelques pourcents sur le nombre final de photons recueillis par la photocathode par rapport au papier Aluminium. Elles ont le mérite de mieux vieillir que les peinture à base de TiO_2 .

Durant l'ensemble des expériences qui suivent, le revêtement utilisé est constitué de feuilles de Téflon enroulées autour du scintillateur étudié. En effet, les qualités du revêtement diffusant sont étroitement liées à l'épaisseur de Téflon qui entoure le scintillateur.

5.5 Réponse temporelle

L'étude de la forme temporelle de l'impulsion lumineuse est importante pour la discrimination de particules (Cf. chapitre 8). En effet, le peuplement des états triplets à

5.5. RÉPONSE TEMPORELLE

vie longue dépend du type de particule qui a interagi avec le scintillateur. Or la décroissance temporelle et donc l'émission lumineuse provenant de ces états apparaît dans la queue de la forme de l'impulsion. Ainsi, les constantes temporelles permettant de rendre compte de la forme de l'impulsion lumineuse observée sont révélatrices des phénomènes de fluorescence prompte, retardée et de phosphorescence.

5.5.1 Mesures

Ces expériences ont pour but de visualiser la rapidité des signaux lumineux issus des scintillateurs plastiques dopés au Bore développés au laboratoire.

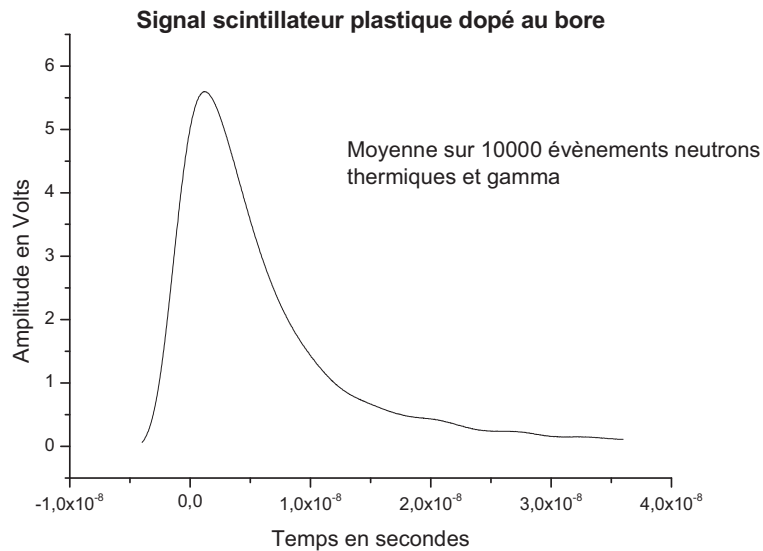


FIG. 5.9: Réponse temporelle des scintillateurs plastiques dopés au bore soumis à un flux de rayonnement neutron - gamma mélangé. Signal provenant de la dynode D12 du pont diviseur.

Pour cette étude, un oscilloscope Tektronix TDS784D a été utilisé. Grâce à ses performances temporelles, il est possible de visualiser le signal rapide issu des scintillateurs étudiés. Le photomultiplicateur employé est un tube XP2020 de la société Photonis, alimenté sous 2000 Volts par une alimentation haute tension programmable CAEN N470. Le signal est très rapide [Mozynski 77] et [King 65] (Cf. figure 5.9), puisque le temps de montée de l'impulsion se situe autour de 1 ns et que la largeur à mi-hauteur vaut environ 10 ns.

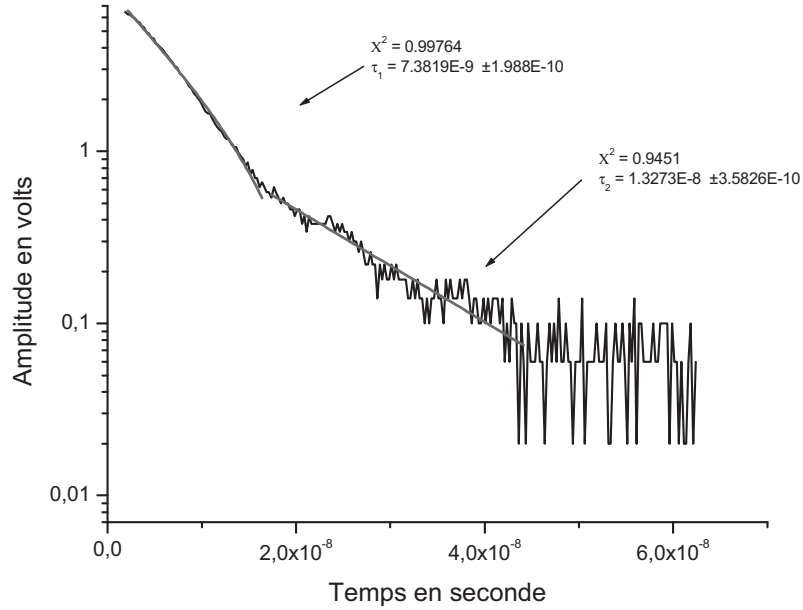


FIG. 5.10: Ajustement avec un modèle à double exponentielle pour une impulsion provenant d'un scintillateur plastique dopé au Bore.

5.5.2 Ajustement de la partie descendante de l'impulsion

Par un ajustement avec un modèle à double exponentielle (Cf. équation 5.2), il est possible de connaître les deux composantes temporelles du scintillateur (Cf. figure 5.10)[Dupont 67].

$$f(t) = A \exp\left(\frac{-t}{\tau_1}\right) + B \exp\left(\frac{-t}{\tau_2}\right) \quad (5.2)$$

L'ajustement donne une composante rapide τ_1 de 7,4 ns et une composante lente τ_2 de 13,3 ns. Les valeurs d'amplitude inférieure à 0,1 Volt n'ont pas été prises en compte car elles correspondent aux oscillations du bruit de fond. Ces valeurs confirment donc bien la différence de la durée de vie entre les états singulets (qui se dépeuplent très rapidement) et les états triplets (qui se dépeuplent plus lentement). La différence entre ces deux constantes est relativement faible par comparaison avec les scintillateurs organiques liquides pour lesquels la composante lente est supérieure à 100 ns [Tilquin 95].

Cet ajustement donne une première approximation puisque le phénomène de fluorescence prompt est de type exponentiel mais que le phénomène de fluorescence retardé et de phosphorescence n'est pas à décroissance exponentielle [Voltz 66]. Cependant en première approximation, ce signal peut être assimilé à la somme de deux exponentielles ayant chacune leur propre constante de temps de décroissance.

Chapitre 6

Caractérisation sous faisceaux de particules

En l'absence de données dans la littérature, il a été nécessaire d'étudier de façon approfondie les propriétés d'émission de lumière de ce type de scintillateur plastique dopé au Bore, en fonction du type de particules incidentes et de leurs énergies. Le but est d'être capable de simuler complètement le comportement lumineux de ces scintillateurs lorsqu'ils sont soumis à un flux neutronique. A cette fin, la connaissance des paramètres de luminescence, ou paramètres de Birks, est indispensable.

Ce chapitre présente les expériences de caractérisation réalisées pour des scintillateurs plastiques dopés au Bore sous faisceaux de protons (jusqu'à 2 MeV) et de particules alpha (jusqu'à 5,4 MeV). Les résultats des ajustements de la loi de Birks à ces mesures sont également exposés.

6.1 Parcours des ions dans les scintillateurs

Deux séries d'expériences ont été menées, la première auprès d'un accélérateur de type Van de Graaff et la seconde au sein même du laboratoire avec une source alpha d'Américium 241.

Par simulation avec SRIM 2000 (© IBM by J. F. Ziegler et al.), il apparaît très nettement sur la figure **6.1** que les alpha et les protons vont interagir dans les premières dizaines de μm du scintillateur. L'expérience envisagée doit donc permettre de mettre au contact directement le faisceau de particules avec la surface du scintillateur, c'est ce que permet le dispositif expérimental présenté sur la figure **6.2**. Compte tenu du dispositif expérimental, seul un peu moins de la moitié des photons générés lors de l'interaction partent dans la direction de la photocathode.

Certains auteurs [Craun 70] ont montré que la réponse lumineuse des scintillateurs n'est pas tout à fait la même selon que ce sont des protons incidents ou des protons de recul (induits par des diffusions élastiques (n,p)). Néanmoins, les mesures réalisées

permettent d'évaluer le domaine dans lequel se situent les paramètres de luminescence des scintillateurs étudiés.

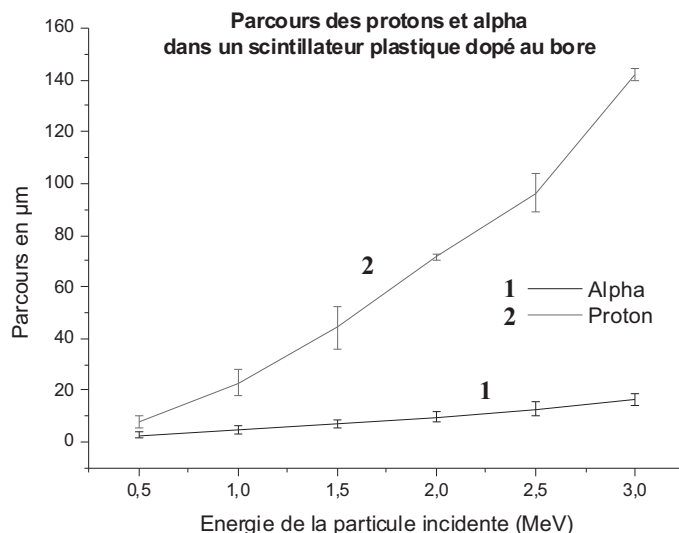


FIG. 6.1: Evolution du parcours des alpha et des protons dans un scintillateur plastique dopé au Bore obtenu par simulation SRIM 2000 [Ziegler 94]

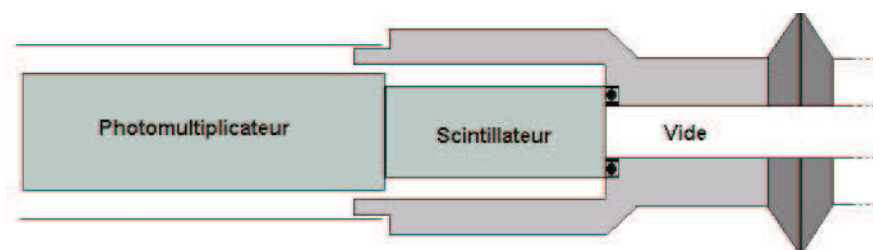


FIG. 6.2: Dispositif expérimental mis en place pour connecter le scintillateur aux faisceaux de particules de l'accélérateur.

6.2 Source étalon

Préalablement aux expériences de caractérisation, un étalonnage de la chaîne de mesure a été réalisé en utilisant une source de référence fournie par le LNHB (Laboratoire National Henri Becquerel du Département d'Application de Métrologie des Rayonnements Ionisants). Cette source est constituée d'un scintillateur liquide Ultima Gold (composé principalement de di-isopropylnaphtalène et de diphenyloxazol) chargé avec de l'Américium 241 dissout dans le scintillateur liquide.

6.2. SOURCE ÉTALON

Les alpha provenant de l'Américium vont exciter directement le scintillateur liquide. Le scintillateur et la source sont contenus dans un flacon dont toutes les parois sont recouvertes d'une couche de peinture diffusante à base de TiO_2 sauf la face couplée optiquement au photomultiplicateur. D'autre part, le LNHB dispose d'une chaîne d'acquisition photonique étalon, ce qui permet de déterminer précisément la quantité de photoélectrons générés sur la photocathode par l'interaction des particules alpha de 5,479 MeV de l'Américium 241 avec le scintillateur.

Le spectre alpha de cette source est donné figure 6.3. Il a été obtenu en couplant optiquement la cellule contenant le mélange scintillant à un photomultiplicateur XP2020 alimenté sous 2000 Volts. Les impulsions sont ensuite amplifiées par un amplificateur ORTEC 450, puis numérisées par une carte analyseur multicanaux TRUMP 8k.

La mesure avec la source étalon conduit à un résultat moyen de 734 photoélectrons en utilisant un photomultiplicateur Burle 8850 en mode comptage de photons. L'écart type sur la mesure est de ± 27 photoélectrons. La comparaison de ces résultats avec les dispositifs expérimentaux du laboratoire a permis d'effectuer une calibration des chaînes de mesures utilisées pour les expériences sous alpha et protons.

Par ailleurs, le domaine de sensibilité spectral des photomultiplicateur Burle 8850 (maximum à 420 nm) et XP2020 (maximum à 425 nm) sont comparables. De même, le maximum de l'émission du scintillant liquide utilisé et celui des scintillateurs testés durant ce travail sont comparables.

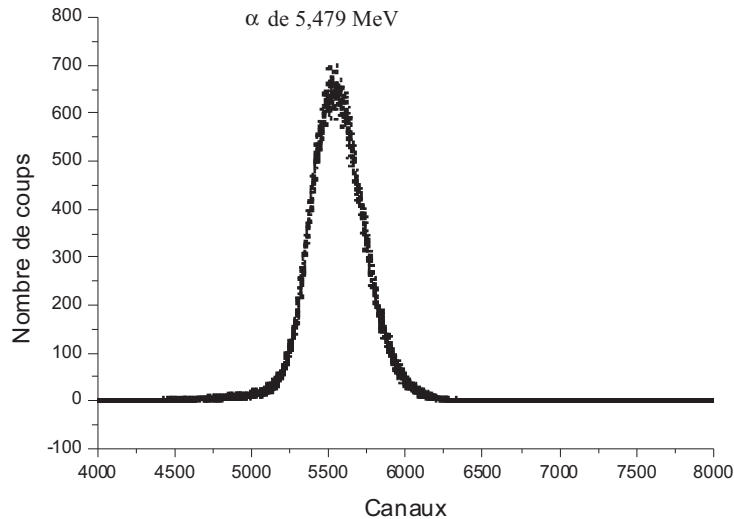


FIG. 6.3: Spectre d'une source alpha d'Américium 241 dissoute dans un scintillateur liquide : l'Ultima Gold

6.3 Sous faisceaux de protons au Van de Graaff

La machine utilisée est celle de l'Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires (I.N.S.T.N.) sur le site du CEA-Saclay. Cet accélérateur sert à l'enseignement mais permet également de réaliser quelques expériences de physique. Cette machine est de conception relativement ancienne. Des problèmes de stabilité de celle-ci se sont posés notamment au moment des réglages initiaux lors des changements de gaz de remplissage de la cavité accélératrice.

En fonctionnement normal, la stabilité en énergie du faisceau généré par la machine est de 0,7 keV pour des protons de 1 MeV. La plage de fonctionnement stable de cette machine est très étroite puisqu'elle s'étend de 500 keV à 2 MeV en protons.

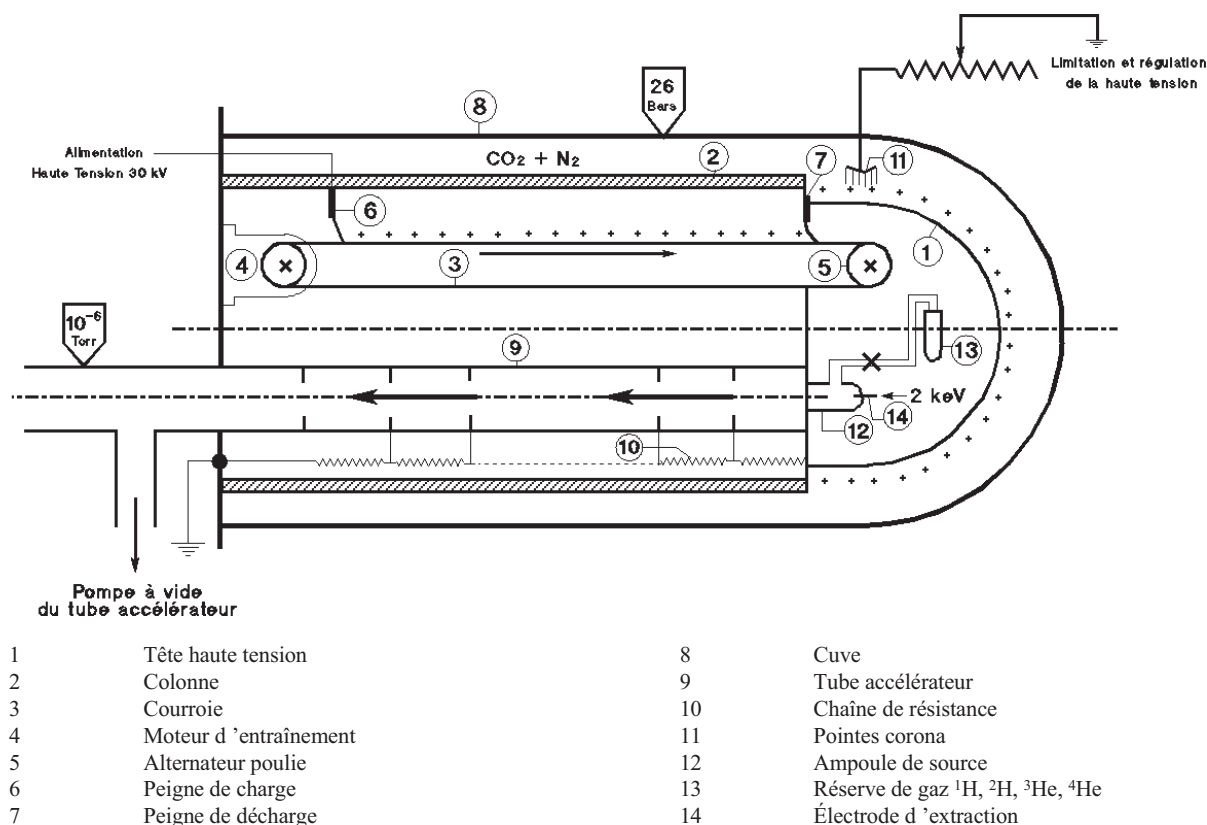
6.3.1 Présentation du dispositif expérimental

La figure 6.4 présente le schéma de fonctionnement de cet accélérateur électrostatique, qui fonctionne sur le principe d'un Van de Graaff. Les faisceaux de particules générés par ce type d'accélérateur ne sont pas purs. Un certain nombre d'impuretés demeurent dans les lignes de faisceaux, telles que les vapeurs d'huile provenant des pompes à vide. Des particules de Carbone peuvent alors apparaître suite au crackage de ces hydrocarbures par le faisceau très intense. Ces atomes de Carbone peuvent être activés par les protons ou les deutons. Ce bruit de fond radioactif est de nature à perturber les mesures des faibles niveaux de luminescence générée par les protons dans les scintillateurs.

Les plastiques sont très sensibles aux particules chargées. L'intensité est de $3,2 \cdot 10^{11}$ protons.s⁻¹ pour un diamètre de faisceau de 0,5 mm sur la cible. L'approche par faisceau rétrodiffusé a donc été retenue. Le faisceau est focalisé sur une cible d'or de 350 nm d'épaisseur. Cette méthode permet de diminuer de 67 % la luminosité du faisceau rétrodiffusé par rapport au faisceau incident. En effet, la quantité d'énergie dissipée dans le scintillateur aurait été trop grande s'il y avait eu une attaque directe du faisceau. Cet échauffement aurait entraîné une fusion du plastique.

Le faisceau rétrodiffusé par la cible en or est contrôlé par une diode Silicium qui permet, après étalonnage, de connaître l'énergie des particules incidentes sur le scintillateur. Pour cela, cette diode de 100 μ m d'épaisseur est située à l'angle de rétrodiffusion complémentaire par rapport à la position du scintillateur vis à vis de la cible en Or. Les résultats des mesures de l'énergie du faisceau sont présentés dans le tableau 6.1. En outre, un exemple de spectre obtenu pour des protons de 2 MeV est donné sur la figure 6.5. Lors des ajustements de la loi de Birks, qui sont réalisés dans les paragraphes suivants, c'est l'énergie moyenne du faisceau de protons qui est prise en compte.

6.3. SOUS FAISCEAUX DE PROTONS AU VAN DE GRAAFF



ACCELERATEUR ELECTROSTATIQUE VAN DE GRAAFF

FIG. 6.4: Schéma de l'accélérateur Van de Graaff

Energie théorique	Energie minimale mesurée	Energie maximale mesurée
1 MeV	0,886 MeV	0,983 MeV
1,25 MeV	1,142 MeV	1,229 MeV
1,5 MeV	1,394 MeV	1,474 MeV
1,75 MeV	1,645 MeV	1,720 MeV
2 MeV	1,896 MeV	1,965 MeV

Tableau 6.1: Energies des protons incidents

La photo 6.6 présente le dispositif mis en place sur la ligne de faisceau du Van de Graaff. L'ensemble constitué du photomultiplicateur et du scintillateur est connecté via le dispositif mécanique présenté sur la figure 6.2 à une enceinte cylindrique dans laquelle le faisceau vient frapper la cible en Or. Comme le montre la figure 6.2, seule la face d'entrée des particules dans le scintillateur est sous vide. L'ensemble est maintenu par la pression des ressorts du pont diviseur, ce qui permet d'avoir à la fois un bon couplage optique entre le scintillateur et la photocathode et une bonne étanchéité au vide entre le

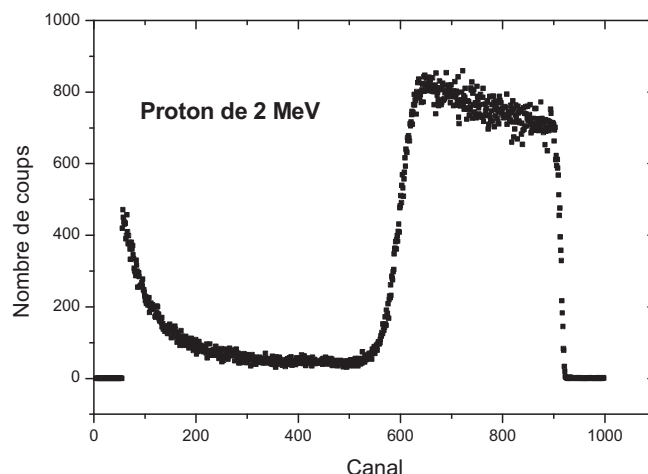


FIG. 6.5: Exemple de spectre obtenu avec la diode Silicium pour des protons de 2 MeV.

scintillateur et la ligne de faisceau. Ce dispositif évite de placer l'ensemble scintillateur - photomultiplicateur dans une enceinte sous vide. Par contre son principal désavantage est que les particules interagissent à l'extrémité non instrumentée du scintillateur et que plus de la moitié des photons produits partent dans une direction opposée à celle de la photocathode.

En effet, comme le montre la figure 6.1, le parcours des particules ne dépasse pas $80\ \mu\text{m}$ pour la plus forte énergie incidente. L'émission lumineuse étant isotrope, environ 50 % des photons générés partent en direction de la ligne de faisceau et sont donc définitivement perdus. A cause de l'atténuation intrinsèque au scintillateur, vis à vis de sa propre émission lumineuse, les paquets de photons ainsi générés sont atténués. Il faut donc tenir compte de cette atténuation pour le calcul du nombre final de photons.

6.3.2 Mesures

La figure 6.7 permet de suivre l'évolution du spectre en fonction de l'énergie du proton incident. Les spectres obtenus sont présentés figure 6.8 pour le scintillateur développé dans le laboratoire et figure 6.9 pour le scintillateur commercial BC454. A partir de ces données expérimentales, un premier traitement a été réalisé en ajustant une gaussienne au pic correspondant à la particule incidente sur le scintillateur pour en déterminer le centre. Les temps de mesures sont de 1000 s pour tous les spectres. La courbe n°2 correspondant aux protons de 1,75 MeV ne présente pas le même nombre d'événements que les autres suite aux aléas d'expérience sur l'accélérateur.

6.3.3 Résultats

Les résultats des ajustements gaussiens sont consignés dans le tableau 6.2. Compte tenu du dispositif expérimental (Cf. figure 6.2), 51,5 % des photons générés n'atteignent

6.3. SOUS FAISCEAUX DE PROTONS AU VAN DE GRAAFF

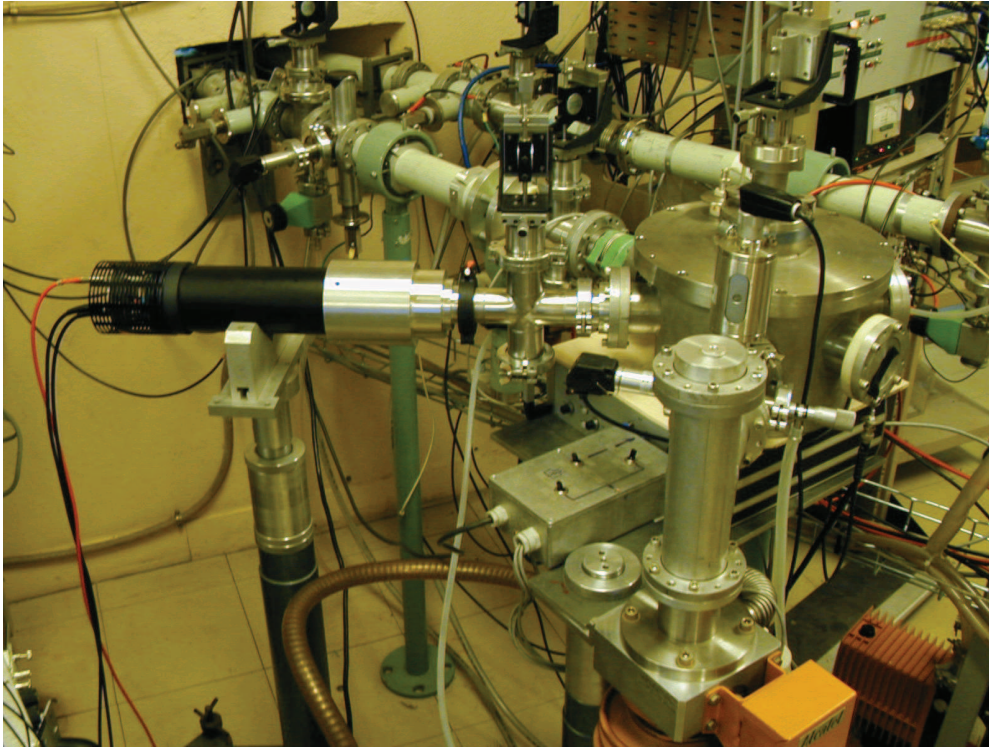


FIG. 6.6: Photo de l'expérience menée auprès du Van de Graaff de l'I.N.S.T.N.

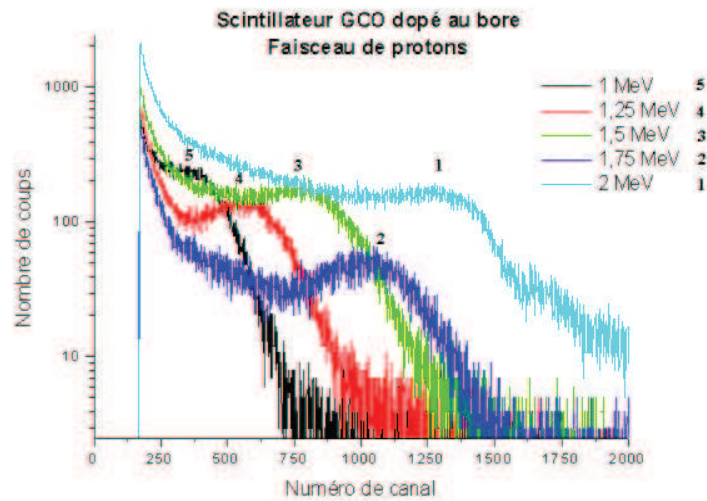


FIG. 6.7: Spectres protons obtenus pour le scintillateur plastique dopé au bore développé au laboratoire (Scintillateur GCO)

pas la photocathode du photomultiplicateur (Cf. chapitre 7 pour la simulation de la propagation des photons dans les scintillateurs). Il en a été tenu compte dans le calcul final du nombre de photons réellement générés.

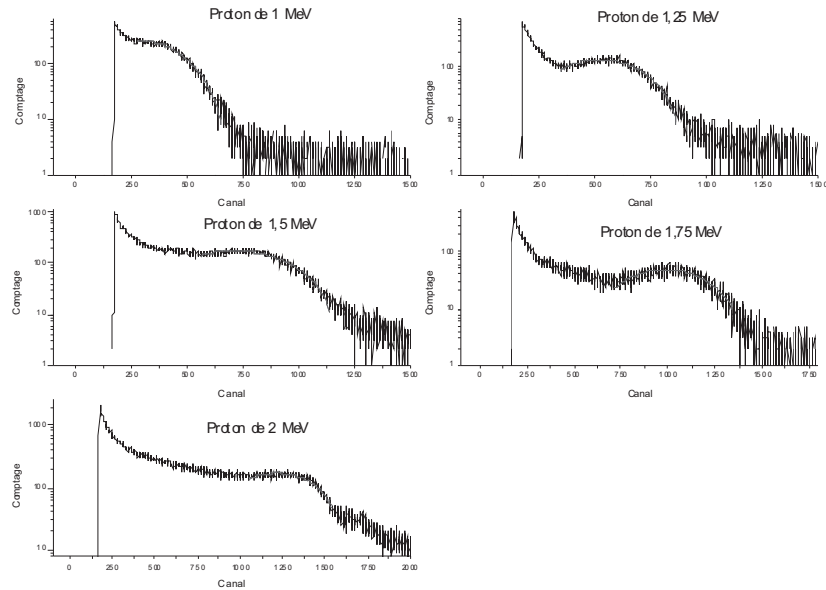


FIG. 6.8: Réponse du scintillateur développé au laboratoire (GCO) pour des protons de différentes énergies

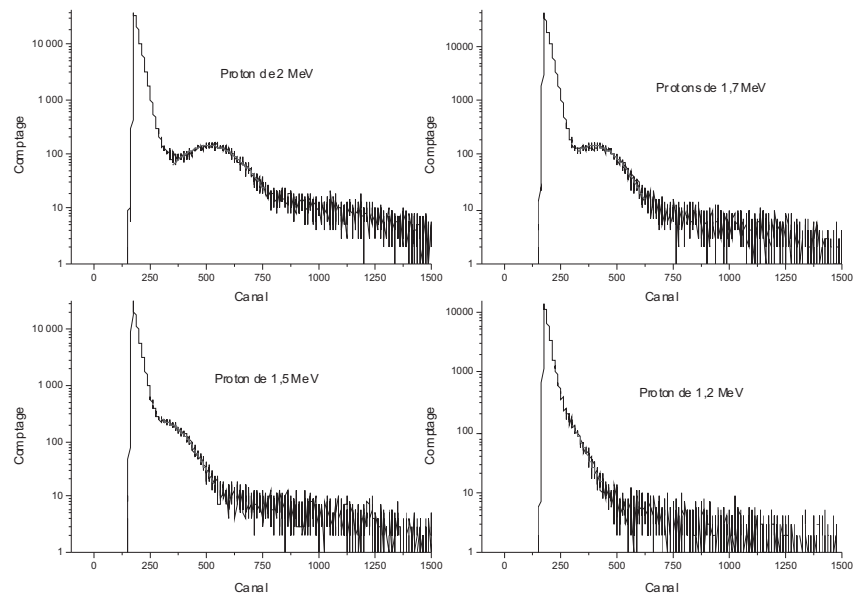


FIG. 6.9: Réponse du scintillateur BC454 pour des protons de différentes énergies

La quantité de photons détectée dépend du rendement de photocathode, de la haute tension et du gain de l'amplificateur. Cette chaîne a été utilisée avec les mêmes paramètres

6.4. SOUS RAYONNEMENTS ALPHA AU LABORATOIRE

de gain et de haute tension utilisés lors de la calibration. Ainsi, les mesures tiennent compte intrinsèquement des pertes liées à la chaîne de mesure.

Energies (MeV)	Scintillateur	Centre de la gaussienne (canal)	Nombre de photons
1	GCO	313	123
1,25	GCO	521	197
1,5	GCO	714	271
1,75	GCO	983	365
2	GCO	1216	452
1,2	BC454	212	78
1,5	BC454	289	106
1,7	BC454	395	145
2	BC454	513	189

Tableau 6.2: Résultats des ajustements gaussiens pour les protons

Le tableau **6.2** présente les résultats obtenus pour les protons.

6.4 Sous rayonnements alpha au laboratoire

Suite à des limitations internes de la machine disponible à Saclay, il n'a pas été possible de monter au delà de 2 MeV en énergie. Cette énergie n'a pas permis d'accéder à une mesure exploitable pour les alpha. Ainsi, une source d'Américium 241 a été utilisée au laboratoire pour les mesures de caractérisation des scintillateurs sous rayonnement alpha. Le spectre de ce type de source est donné dans le tableau **6.3**.

Energie (MeV)	Fraction (%)
5.3880	1,4%
5.4430	12,8%
5.4857	85,2%
5.5120	0,2%
5.5443	0,34%
5.3082	0,03%

Tableau 6.3: Répartition du spectre en énergie des particules alpha issues d'une source d'Américium 241

6.4.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est le même que celui utilisé auprès du Van de Graaff. Une source alpha est mise en vis à vis avec la face d'entrée du scintillateur à une distance de 4 cm, l'ensemble est maintenu sous un vide primaire. Compte tenu de la pression résiduelle

(inférieure à 10^{-3} mbar), l'atténuation des alpha, est quasiment négligeable entre la source et le scintillateur.

Epaisseur des feuilles d'Aluminium (μm)	Energie moyenne simulée (MeV)	Energie moyenne mesurée (MeV)	Straggling simulé (keV)
12	3,353	3,096	± 277
10	3,755	3,534	± 260
8	4,135	3,949	± 216
6	4,497	4,374	± 83
4	4,840	4,762	± 65
2	5,169	5,115	± 50
0	5,485	5,485	0

Tableau 6.4: Energie des alpha incidents

Afin de balayer un certain nombre d'énergie alpha, un ou plusieurs écrans en Aluminium de $2\ \mu\text{m}$ d'épaisseur ont été placés entre le détecteur et la source. Ce dispositif permet de dégrader l'énergie des alpha selon l'épaisseur de l'écran utilisé. Cependant le principal inconvénient de cette méthode est la dispersion en énergie (ou straggling en énergie) résultant de la superposition d'un certain nombre d'écrans entre la source et le scintillateur.

La différence d'énergie observée entre la valeur mesurée et la valeur simulée par le code de calcul SRIM 2000 provient de l'indétermination expérimentale sur l'épaisseur exacte de la feuille. Les valeurs prises en compte dans les calculs des coefficients de luminescence sont celles mesurées.

Moyennant l'acceptation d'une erreur relativement importante sur la détermination de l'énergie, il est possible d'utiliser ce dispositif pour la mesure sous rayonnement alpha. L'énergie et le straggling associé sont consignés dans le tableau **6.4**. Trois scintillateurs ont été testés. Deux sont dopés au Bore, il s'agit du BC454, acheté auprès de la société Bicron, et du GCO qui est le scintillateur dopé au Bore développé dans notre laboratoire. Le troisième scintillateur est un scintillateur plastique non dopé AMCRYS-H UPS99 équivalent au NE102.

6.4.2 Mesures

La figure **6.10**, à titre d'exemple, présente les spectres superposés obtenus pour les différentes énergies alpha étudiées pour le scintillateur plastique dopé au Bore développé au laboratoire. De même que pour les protons, un ajustement gaussien a été réalisé sur les mesures alpha afin de déterminer, après calibration de la chaîne de mesure, la quantité de photons réellement générés par l'interaction d'une particule alpha d'une certaine énergie.

6.4. SOUS RAYONNEMENTS ALPHA AU LABORATOIRE

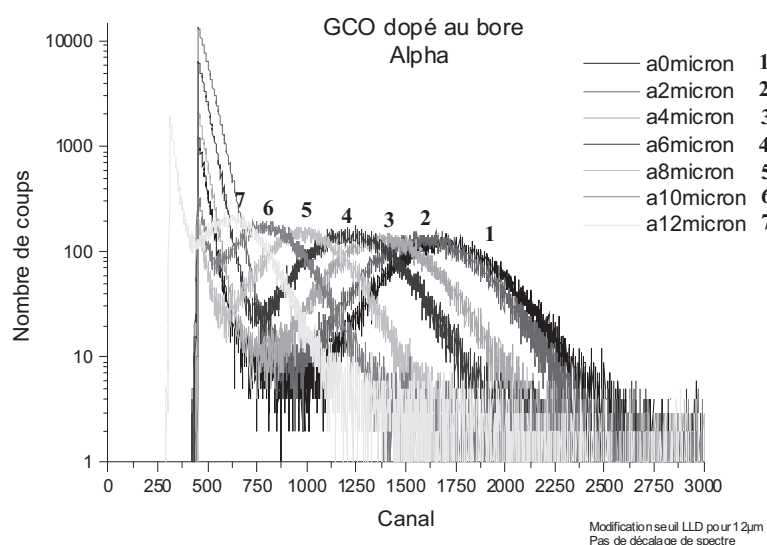


FIG. 6.10: Comparaison des différents spectres alpha obtenus pour le scintillateur développé au laboratoire.

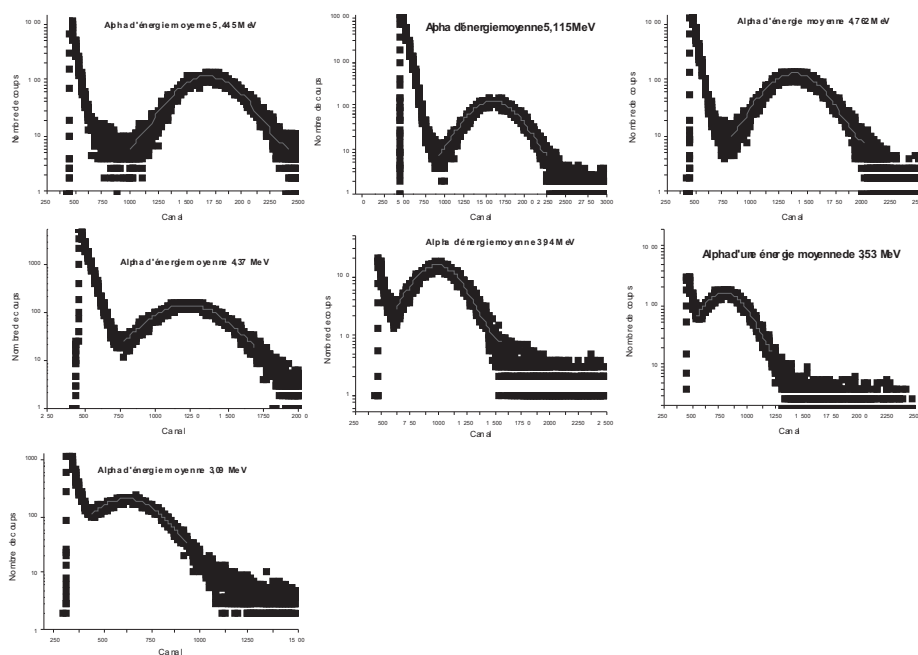


FIG. 6.11: Spectres alpha pour le scintillateur GCO développé au laboratoire

6.4.3 Résultats

Les valeurs des centres des gaussiennes ajustées sont consignées dans le tableau 6.5. L'énergie théorique a été obtenue par simulation grâce au code de calcul SRIM 2000 (© IBM by J.F Ziegler et al.). Les mesures des énergies ont été réalisées grâce à une

CHAPITRE 6. CARACTÉRISATION SOUS FAISCEAUX DE PARTICULES

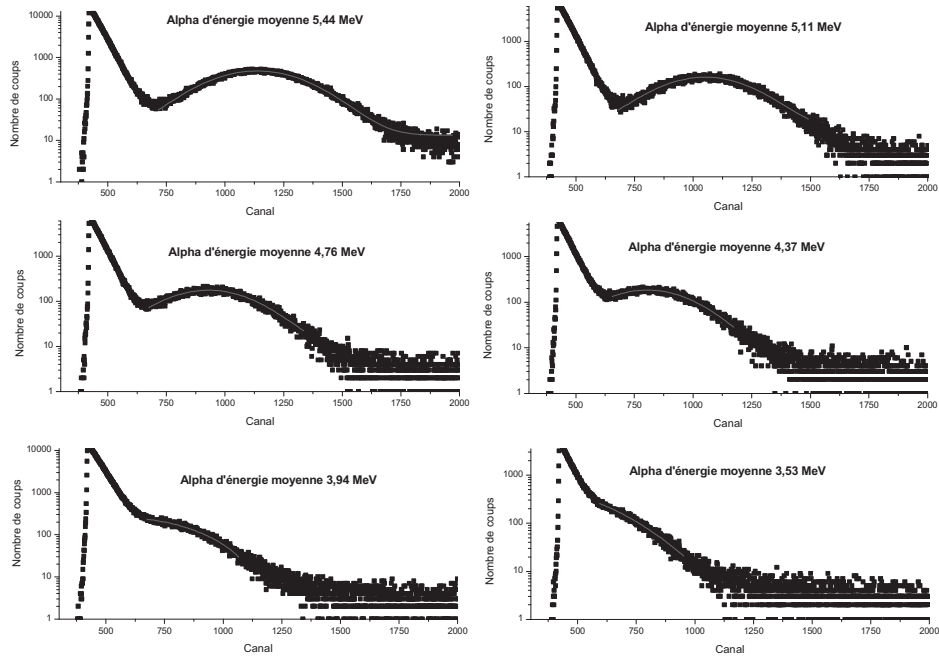


FIG. 6.12: Spectres alpha pour le scintillateur BC454

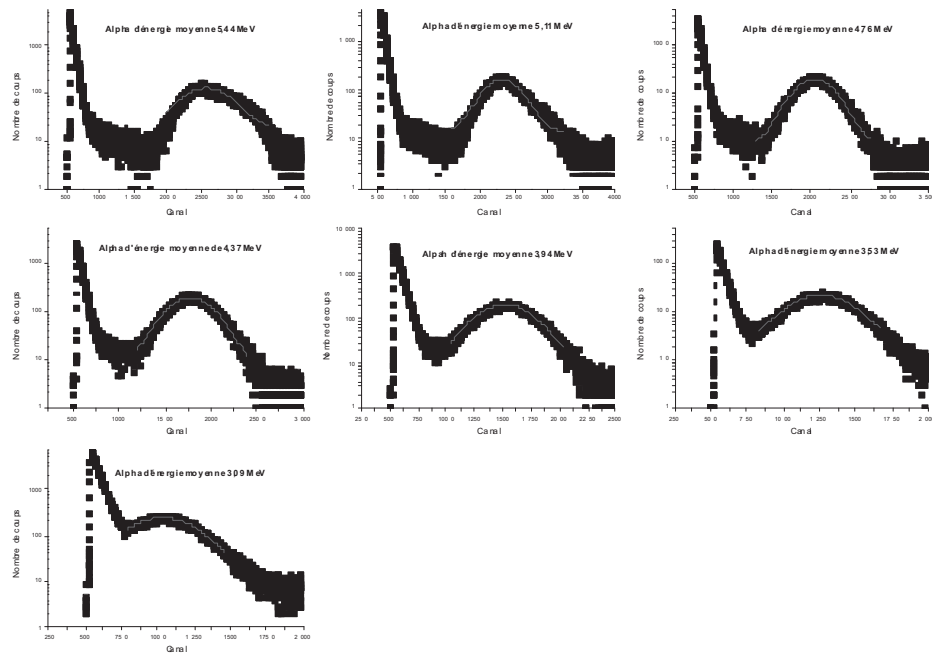


FIG. 6.13: Spectres alpha pour le scintillateur non dopé AMCRYS-H

diode Silicium dans des conditions de vide et de distance source - détecteur comparables. Les figures 6.11, 6.12 et 6.13 représentent l'évolution des spectres en fonction de l'énergie

6.5. DÉTERMINATION DES PARAMÈTRES DE LUMINESCENCE - LOI DE BIRKS

des alpha et du type de scintillateur étudié.

Energie mesurée (MeV)	Energie théorique (MeV)	Scintillateur	Position centrale (canal)	Nombre de photons
3,09	3,35	GCO	618	455
3,53	3,75	GCO	792	583
3,94	4,13	GCO	989	728
4,37	4,49	GCO	1217	896
4,76	4,84	GCO	1388	1022
5,11	5,16	GCO	1597	1176
5,44	5,48	GCO	1690	1244
3,09	3,35	AMCRYS-H	1031	759
3,53	3,75	AMCRYS-H	1260	928
3,94	4,13	AMCRYS-H	1519	1119
4,37	4,49	AMCRYS-H	1779	1310
4,76	4,84	AMCRYS-H	2046	1507
5,11	5,16	AMCRYS-H	2323	1711
5,44	5,48	AMCRYS-H	2577	1898
3,53	3,75	BC454	291	387
3,94	4,13	BC454	571	420
4,37	4,49	BC454	805	593
4,76	4,84	BC454	929	684,6
5,11	5,16	BC454	1050	773,4
5,44	5,48	BC454	1137	837,4

Tableau 6.5: Résultats des mesures sous rayonnement alpha des trois scintillateurs testés

6.5 Détermination des paramètres de luminescence - loi de Birks

6.5.1 Méthode utilisée pour l'ajustement

La loi de Birks, modifiée par Chou (Cf. équation 6.1), est une loi semi-empirique qui demeure très usitée compte tenu de sa simplicité et de la fidélité avec laquelle elle rend compte de la luminescence des scintillateurs.

Des mesures précises du paramètre k_B nécessitent une calibration précise de la chaîne de mesure [Hirschberg 92] et [O'Rielly 96]. A partir des spectres en énergie précédemment obtenus pour les protons et les particules alpha, il a été possible d'extraire une estimation du nombre de photons émis par le scintillateur lors de l'interaction de protons ou d'alpha d'une énergie donnée avec le scintillateur. Ces valeurs ont été obtenues après une calibration de la chaîne d'acquisition (Cf. § 6.2)

Les paramètres caractéristiques de la luminescence du scintillateur (à savoir les paramètres S et kB) sont obtenus par un ajustement paramétrique de la loi de Birks sur les données expérimentales mesurées précédemment. Le paramètre C n'a pas de signification physique, il ne sert qu'à améliorer la finesse de l'ajustement et n'est donc pas comparable d'un scintillateur à un autre.

$$\frac{dL}{dx} = \frac{S \frac{dE}{dx}}{1 + k.B \frac{dE}{dx} + C \left(\frac{dE}{dx} \right)^2} \quad (6.1)$$

L'expression différentielle de la loi semi-empirique de Birks (Cf. équation **6.1**) impose l'utilisation de méthodes d'intégration numérique lors de la réalisation des ajustements par les moindres carrés non linéaires. L'ensemble de ces calculs a été implémenté sous l'environnement Matlab. La méthode de minimisation employée pour l'ajustement par les moindres carrés est celle de Nelder-Mead. A chaque itération de la méthode, le programme calcule la valeur de la luminescence obtenue pour un jeu de paramètres donné. Il ajuste ensuite les paramètres pour l'itération suivante afin de minimiser la différence entre les valeurs simulées avec le jeu de paramètres calculés et les valeurs de luminescence mesurées. L'arrêt des itérations est commandé par l'utilisateur et correspond au niveau d'erreur qu'il se fixe.

6.5.2 Résultats des ajustements aux mesures

Scintillateur	Ion	S (Ph.MeV ⁻¹ .cm ⁻²)	kB (g.MeV ⁻¹ .cm ⁻²)	C (g.MeV ⁻¹ .cm ⁻²) ²
BC454 ¹	Alpha	1,124.10 ³	6,25.10 ⁻³	1,07.10 ⁻⁷
	Proton	1,129.10 ³	4,37.10 ⁻³	1,09.10 ⁻⁸
GCO ²	Alpha	1,159.10 ³	3,65.10 ⁻³	2,54.10 ⁻⁷
	Proton	1,547.10 ³	1,91.10 ⁻³	1,28.10 ⁻⁷
UPS-99 ³	Alpha	1,213.10 ³	2,42.10 ⁻³	5,90.10 ⁻⁹

Tableau 6.6: Résultats des ajustements de la loi de Birks pour les trois scintillateurs.

Les résultats des ajustements utilisant l'environnement Matlab sont présentés sur les figures **6.14**, **6.15** et **6.16**. Les paramètres de la loi de Birks sont exprimés dans les unités usuelles. La perte d'énergie est exprimée en MeV.(g.cm⁻²)⁻¹ et non en MeV.cm⁻¹.

¹ Scintillateur plastique dopé à 5 % en masse de Bore naturel fabriqué par Bicron

² Scintillateur plastique dopé à 5 % en masse en Bore naturel fabriqué au sein du laboratoire

³ Scintillateur plastique non dopé fabriqué par la société AMCRYS-H

6.5. DÉTERMINATION DES PARAMÈTRES DE LUMINESCENCE - LOI DE BIRKS

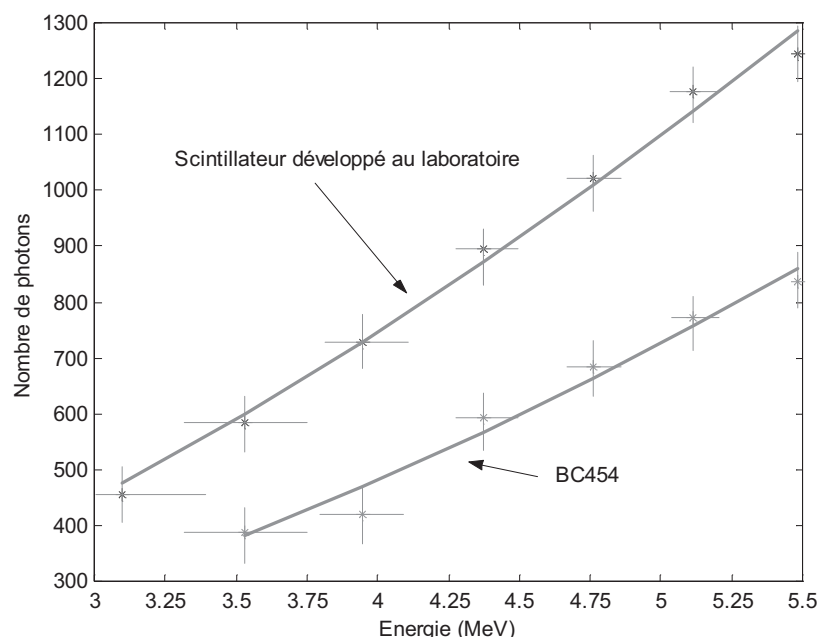


FIG. 6.14: Ajustement de la loi de Birks aux données alpha du scintillateur commercial BC454 et à celles du scintillateur développé au laboratoire

A la vue des résultats consignés dans le tableau **6.6**, il apparaît que le scintillateur non dopé présente de meilleurs paramètres de luminescence, puisque le paramètre S est le plus grand et que le paramètre kB , facteur de quenching, est le plus faible des trois scintillateurs testés. Cette différence de rendement lumineux s'explique par plusieurs facteurs.

- 1 - Le type de molécules fluorescentes et leurs concentrations ne sont pas les mêmes. Or, selon la molécule les transferts non radiatifs sont plus ou moins favorisés. Selon la concentration à laquelle elle est utilisée, une espèce moléculaire perdra tout ou partie de son rendement de luminescence. Ainsi, il existe un optimum, type de molécule - concentration à utiliser, afin de maximiser la quantité de photons émis suite à la détection de la particule nucléaire.
- 2 - L'âge du scintillateur et son histoire jouent un rôle important. En effet, le vieillissement des scintillateurs induit une dégradation des propriétés optiques et particulièrement de la transparence. Ainsi, les rendements de luminescence mesurés pour différentes particules, en début d'utilisation d'un scintillateur, ne sont pas les mêmes après une utilisation plus ou moins intensive du scintillateur (Cf. § **6.6** sur la tenue aux radiations des scintillateurs).

La figure **6.16** confirme visuellement que les rendements de luminescence sont meilleurs pour un scintillateur non dopé (le scintillateur Amcrys-H, par exemple) que pour un scintillateur dopé (GCO développé au laboratoire ou le BC454 acheté auprès de la société Bicron, Newbury OHIO). En effet, le dopage induit une plus forte probabilité de "quen-

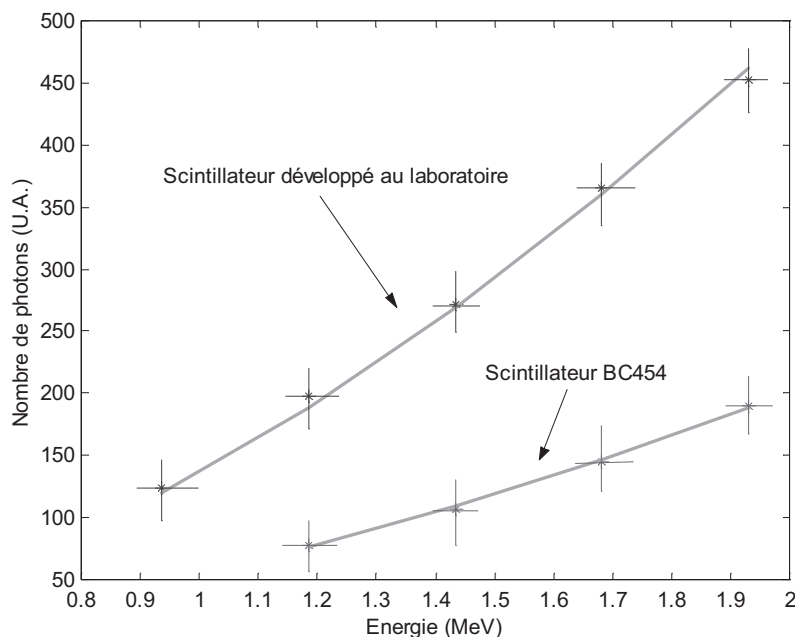


FIG. 6.15: Ajustement de la loi de Birks aux données pour les protons du scintillateur commercial BC454 et du scintillateur développé au laboratoire

ching” et entraîne aussi une diminution de la longueur de demi atténuation.

Le paramètre S permet de juger de la production de photons du scintillateur testé. Le scintillateur plastique dopé au Bore réalisé au sein de notre laboratoire présente un paramètre S plus important que son homologue BC454. Le paramètre kB , qui représente le ”quenching” au sein du scintillateur, est plus important pour le BC454 que pour le scintillateur développé au sein de notre laboratoire. Par ailleurs, une faible production de photons peut être compensée par un faible coefficient de ”quenching”. Il faut donc disposer d’un scintillateur avec un fort pouvoir de production de photons de luminescence mais également avec un facteur d’extinction ou ”quenching” le plus faible possible.

Ces deux paramètres sont donc opposés puisqu’il faut augmenter la concentration en molécule fluorescente pour augmenter le paramètre S . En contre partie, le fait d’augmenter la concentration en molécule fluorescente dans le scintillateur va entraîner une augmentation du phénomène de ”quenching”. L’optimum de concentration des molécules utilisées est donc un compromis afin de maximiser la production de photons de scintillation et de minimiser l’extinction au sein du matériau.

Le fait de disposer des paramètres de luminescence permet d’envisager une simulation de la production des photons de scintillation pour ces scintillateurs plastiques dopés au Bore. Ces données n’étaient pas disponibles dans la littérature. En effet, l’essentiel des

6.5. DÉTERMINATION DES PARAMÈTRES DE LUMINESCENCE - LOI DE BIRKS

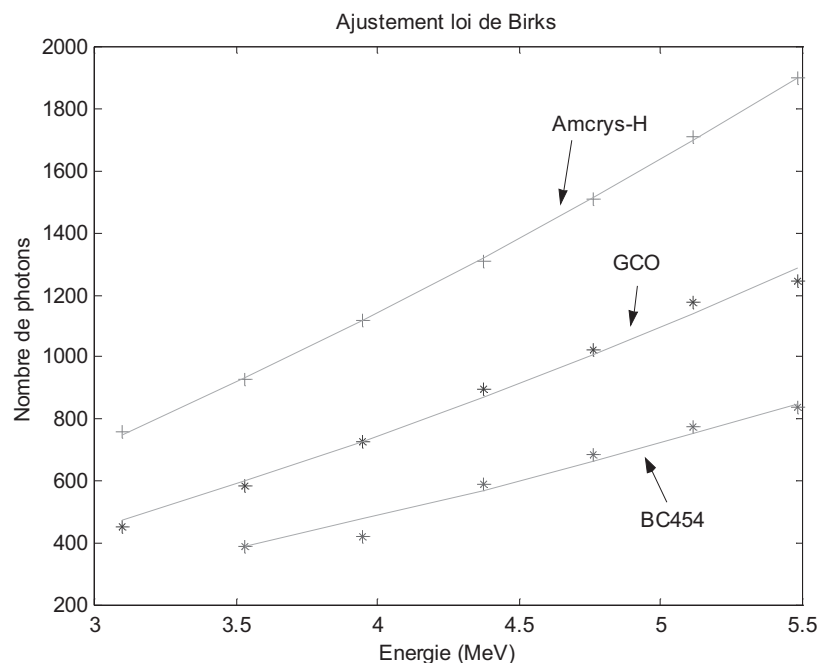


FIG. 6.16: Ajustement de la loi de Birks pour des particules alpha : Comparaison de trois scintillateurs testés

expériences de caractérisation présenté dans la littérature a été réalisé pour des scintillateurs plastiques non dopés, qui sont largement utilisés dans les expériences de physique nucléaire ou de physique des particules.

Même s'il a été montré par Mouatassim [Mouatassim 95] que les paramètres de luminescence d'un scintillateur ne sont pas les mêmes si ce sont des protons reçus d'un faisceau d'accélérateur ou des protons générés grâce au recul dû à l'interaction des neutrons rapides avec les noyaux d'Hydrogène de la matière, l'ensemble des mesures alpha et protons réalisées précédemment permettent d'évaluer les paramètres de luminescence des scintillateurs étudiés. En effet, l'interaction des neutrons avec le scintillateur modifie localement les propriétés d'émission de lumière (dégradation des molécules). La production de photons est alors diminuée lorsqu'un proton de recul interagit avec le matériau scintillant, ce qui n'est pas le cas lorsqu'un proton extérieur interagit directement par effet coulombien.

L'ensemble des mesures de luminescence a été réalisé avec une erreur de $\pm 20\%$. Malgré ce niveau d'erreur important, les paramètres déduits des mesures réalisées tant auprès de l'accélérateur qu'au niveau du laboratoire ont permis de conduire une simulation du comportement globale du scintillateur avec un bon niveau de fiabilité.

6.6 Tenue aux radiations

Les molécules présentant une forte concentration d'électrons π subissent moins de dégâts lors d'une irradiation. Cela tient au fait que les processus chimiques de recombinaisons sont plus faciles avec ces structures électroniques [Milinchuk 99].

La tenue aux rayonnements des scintillateurs est corrélée avec leurs capacités à inhiber les radicaux libres générés par l'interaction des rayonnements nucléaires avec le scintillateur [Puertolas 91]. En ce sens, la présence de nombreux noyaux benzéniques au sein de la structure du scintillateur permet d'améliorer les performances à la tenue aux radiations. En fait, la stabilité dépend également du type de radicaux que l'irradiation est susceptible d'engendrer au sein du polymère. Il a été noté par Barashkov [Barashkov 96] une perte de 20 % de rendement lumineux pour une dose de 10^3 Gy. Par contre la perte de transparence n'est que de 2 à 6 % pour la même dose. De même Hamada [Hamada 99] a également noté une diminution notable des performances optiques après irradiation couplée également à une fragilisation au niveau mécanique.

La dose de demi-destruction d'un scintillateur varie en fonction de ses propres constituants [Birks 58]. Tous les chiffres suivants sont donnés pour des particules alpha provenant du Polonium, comme source excitatrice et d'irradiation. Le polystyrène seul peut subir une dose intégrée de $5 \cdot 10^5$ Gy, alors que des mélanges de polystyrène avec 3 % de p-terphényl et 0,02 % de TPB (analogue du POPOP) peuvent subir une dose intégrée de $6 \cdot 10^5$ Gy avant de présenter des dégâts analogues. Certains mélanges scintillants plastiques spéciaux peuvent subir des doses cumulées de 10^6 Gy. Ces plastiques disposent de beaucoup d'électrons "disponibles" qui permettent de recombinaison les radicaux formés par les dégâts causés lors de l'irradiation. De plus, les radicaux radio-induits produits dans ces matériaux sont stables pour la plupart et n'interagissent pas avec les molécules composant le scintillateur. Le choix de la base utilisée pour la réalisation du scintillateur conditionne sa tenue aux radiations [Zorn 88]. Des essais de récupération des propriétés de luminescence de scintillateur abimés par une irradiation ont été tentés par Johnsonand [Johnsonand 91]. Malgré la mise au point de ce type de traitement, ces scintillateurs demeurent fragiles aux irradiations en comparaison avec des détecteurs de type gaz.

6.7 Réponse aux neutrons

Le spectre caractéristique de ce type de scintillateurs exposés à un flux de neutrons thermiques est présenté figure 6.17. La source utilisée est une source combinée Américium - Béryllium thermalisée par 10 cm de paraffine et entourée d'une feuille de plomb de 4 mm. Cette feuille de Plomb a pour effet d'atténuer les gamma d'énergie majoritairement comprise entre 59 keV et 14 keV émis lors de la désintégration alpha de l'Américium.

Le dispositif expérimental est constitué d'un scintillateur plastique dopé ou non au Bore couplé optiquement à un photomultiplicateur XP2020 alimenté sous 2000 Volts. Le signal est amplifié et mis en forme par un amplificateur ORTEC 450 (gain de 500 avec

6.7. RÉPONSE AUX NEUTRONS

une constante d'intégration de $1\ \mu\text{s}$). Le signal conditionné est alors analysé par une carte analyseur multicanaux TRUM 8k.

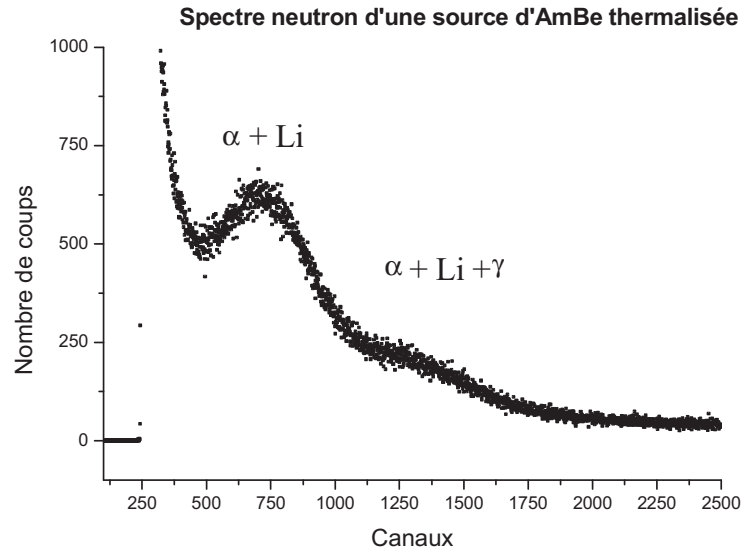


FIG. 6.17: Spectre en énergie d'un scintillateur plastique dopé au bore BC454 irradié par un flux de neutrons thermiques issu d'une source d'AmBe thermalisée.

Outre le pic principal issu de l'interaction des ions alpha et lithium émis par la réaction de capture, il apparaît nettement un épaulement qui correspond à l'interaction simultanée du photon gamma de 478 keV (essentiellement par effet Compton) et des deux ions Lithium et alpha au sein du scintillateur. Ce pic est proche du niveau de bruit de fond électronique de la chaîne de mesure. Ceci rend sa détection délicate en présence d'un milieu fortement bruité tant sur le plan électronique que radioactif. Après étalonnage grâce à des sources bêta, nous avons montré que ce pic se situe autour de $100\ \text{keV}_{ee}$. C'est à dire que la capture d'un neutron thermique ne génère pas plus de photons de scintillation qu'un électron de 100 keV, alors qu'elle libère 2,7 MeV d'énergie.

Une comparaison de la réponse d'un scintillateur plastique dopé au Bore et d'un scintillateur plastique simple a été réalisée. Le pic correspondant aux neutrons thermiques apparaît très nettement (Cf. figure 6.18) pour un scintillateur dopé, alors que pour un scintillateur non dopé, le spectre ne présente aucun pic significatif. Par contre, l'épaulement visible sur la figure 6.17 n'apparaît pas sur la figure 6.18. Ceci est dû à deux choses :

- La mise en oeuvre (gain de l'amplificateur et constante de mise en forme du signal) est différente entre les deux expériences.
- Le scintillateur dont les résultats sont présentés sur la figure 6.18 a subi un certain nombre de tests et d'expériences qui ont dégradé ses propriétés luminescentes et optiques.

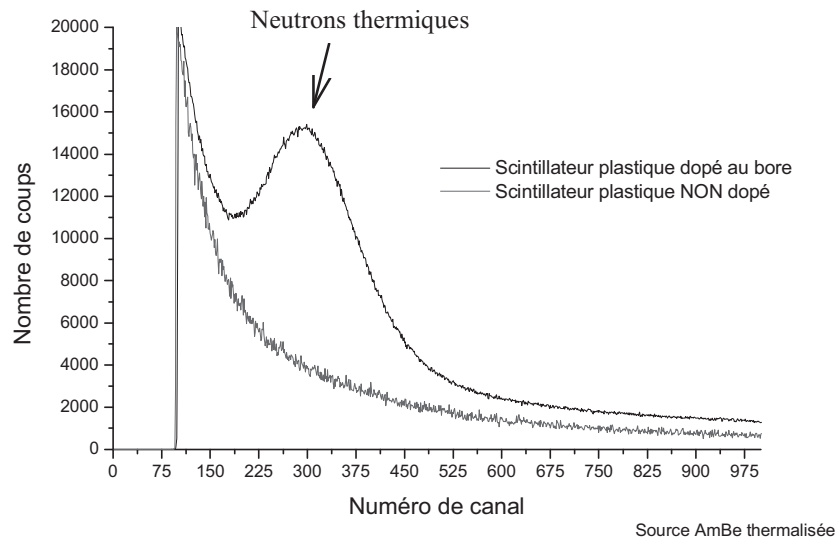


FIG. 6.18: Comparaison du spectre neutronique obtenu pour un scintillateur plastique non dopé et un scintillateur plastique dopé au bore

En utilisant la source étalon du LNHB, le nombre de photons, qui sont émis pour une interaction de capture de type (n,α) d'un neutron thermique par un noyau de Bore 10, a été évalué à 300 ± 50 photons équivalents à 425 nm. Pour ce calcul, il a été tenu compte des pertes dues à la présence d'un seul photomultiplicateur et de l'atténuation due au matériau.

Chapitre 7

Modélisation de la réponse neutronique et lumineuse

La simulation du comportement des scintillateurs plastiques dopés au Bore permet d'optimiser la géométrie finale du détecteur afin de maximiser l'efficacité de détection. La propagation de la lumière dans ces scintillateurs a également été étudiée afin d'en appréhender les facteurs d'influence sur le rendement de collection des photons. La modélisation globale (neutronique et lumineuse) de ce type de détecteur permet de rendre compte de la quantité de lumière finalement disponible après une interaction neutronique. Ainsi, il est possible de simuler la quantité de signal disponible en sortie du photomultiplicateur.

7.1 Adéquation du code de calcul neutronique

Des études, conduites par [Kamykowski 92],[Kamykowski 90],[McElhaney 90] et [Byrd 94], ont été menées afin de déterminer si ce type de code de calcul permet de rendre compte correctement du comportement des neutrons dans les scintillateurs. A la lumière des résultats obtenus et des comparaisons avec des séries de mesures expérimentales, les auteurs de ces articles sont arrivés à la conclusion que les codes de calcul de transport neutronique de type MCNP peuvent s'appliquer aux scintillateurs plastiques dopés au Bore. Ce type de code rend compte de l'interaction des rayonnements non chargés (typiquement les neutrons ou les gamma) avec la matière. De plus, la composition du scintillateur plastique dopé au Bore, ainsi que sa géométrie, peuvent y être précisément définis.

Les études précédemment menées sur ces scintillateurs ont porté sur la durée de vie du neutron dans le scintillateur, c'est à dire le temps nécessaire pour qu'il perde suffisamment d'énergie pour atteindre le niveau du thermique (à savoir 25 meV) et qu'il soit absorbé par un noyau de Bore 10. Des simulations complémentaires ont également été conduites concernant l'étude de la réponse neutronique, en d'autres termes, l'efficacité de détection des scintillateurs plastiques dopés au Bore en fonction de l'énergie des neutrons incidents.

7.2 Simulation neutronique à l'aide de MCNP

7.2.1 Présentation du code de calcul

Le code de transport neutronique utilisé est le code de calcul MCNP Version 4B2 [Briesmeister 97] développé par le laboratoire américain de Los Alamos. Ce code permet la simulation du transport et des interactions de particules telles le neutron ou le photon. D'ailleurs, MCNP est l'acronyme de Monte Carlo N-Particules. Néanmoins, il peut également, dans une certaine mesure, simuler le transport des électrons dans la matière.

Ce code de calcul gère l'ensemble des interactions physiques entre les neutrons et la matière. La base de données de sections efficaces ENDF 6 est utilisée pour tous les calculs des taux de réaction.

Ce code Monte Carlo reste, malgré sa complexité, un code de calcul fonctionnant sur la base de méthodes statistiques. Ainsi, les résultats obtenus à l'issue d'une simulation ne doivent pas être pris bruts, mais, avec les tests statistiques s'y afférant afin d'en déterminer la précision et la robustesse.

Le code utilise un fichier d'entrée regroupant toutes les données nécessaires au calcul. Ce fichier permet de définir, entre autre, les matériaux utilisés pour le problème, la géométrie, le type de source utilisée (position, énergie,...) et les accumulateurs statistiques qui définissent ce que l'utilisateur veut retirer comme informations de la simulation. Le fichier résultat fournit en échange les résultats des accumulateurs mais également un ensemble de tests statistiques, qu'il convient de ne pas négliger puisqu'ils permettent de juger de la justesse statistique des simulations.

La simulation du comportement neutronique global des scintillateurs plastiques dopés au Bore implique la connaissance de la trajectoire suivie par le neutron durant son interaction avec le détecteur. A chaque choc réalisé par le neutron durant son existence, le type de noyaux collisionnés, le type d'interaction qui a eu lieu, le dépôt d'énergie effectué ainsi que la position de l'interaction sont consignés dans un fichier de sortie particulier. L'ensemble de ces données est alors repris par le code de simulation de la réponse lumineuse des scintillateurs. Ce dernier utilise l'information sur le type de noyau et l'énergie déposée pour générer le nombre de photons correspondant, en tenant compte de l'endroit où a eu lieu l'interaction neutron - matière dans le scintillateur.

7.2.2 Spectre en énergie des neutrons

Le code de calcul MCNP nécessite la définition d'une source de production de neutrons. Cette source peut être générée par le code lui-même. Dans ce cas, il se charge d'effectuer un tirage Monte Carlo de l'énergie des neutrons issus de cette source en fonction des paramètres fixés par l'utilisateur (source monoénergétique ou au contraire distribution de l'énergie des neutrons suivant une loi particulière de type maxwellienne ou de Watt). D'ailleurs les paramètres géométriques tels les coordonnées d'émission sont également

7.2. SIMULATION NEUTRONIQUE À L'AIDE DE MCNP

tirés selon les méthodes Monte Carlo en respectant les paramètres fixés en entrée par l'utilisateur (source diffuse dans un volume déterminé, ou, au contraire, ponctuelle).

La loi de Watt correspondant à la distribution de l'énergie des neutrons est donnée par l'équation 7.1.

$$P(E) = \exp\left(\frac{-E}{a}\right) \cdot (\sinh(b * E))^{\frac{1}{2}} \quad (7.1)$$

Le spectre en énergie des neutrons simulés est un spectre de fission de Watt centré autour de 500 keV et se terminant vers 7 MeV comme présenté sur la figure 7.1. Ce spectre correspond en moyenne à celui des neutrons émis par les radioéléments présents dans les fûts de déchets.

Ce spectre type ne correspond pas à tous les fûts. En effet, les neutrons émis par les réactions de fission spontanées et par réaction (α, n) ont un spectre qui dépend du type de radioélément présent dans le fût de déchets. De plus, selon la charge en éléments fortement hydrogénés¹ présente dans le fût de déchets, le phénomène de thermalisation peut être plus ou moins important. Le maximum du spectre peut donc être atteint pour des énergies inférieures ou supérieures à 500 keV.

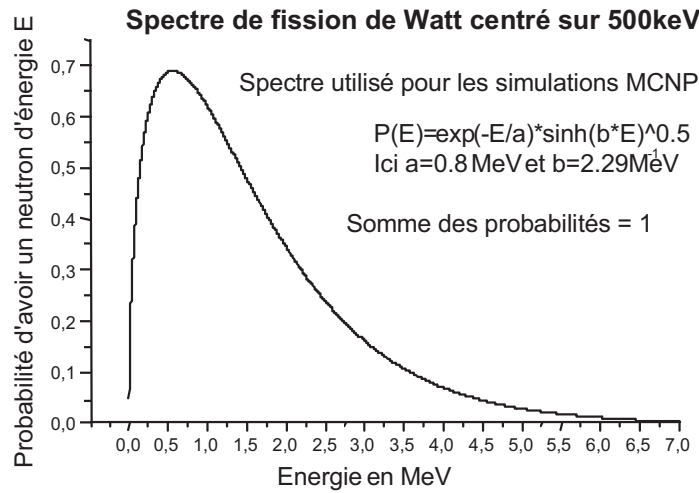


FIG. 7.1: Spectre de Watt donnant la répartition en énergie des neutrons simulés par MCNP

Les coefficients a et b permettent d'ajuster la distribution en énergie des neutrons simulés en fonction du type de colis simulé.

¹Exemple d'éléments fortement hydrogénés : baches en vinyl, filtres en cellulose, gants, etc.

7.2.3 Optimisation de la géométrie pour la détection de neutrons rapides

Angle solide

L'angle solide se définit comme la surface du détecteur vue par la source. La source est approximée à une source ponctuelle. La surface du détecteur vue de la source est ramenée à un rectangle que cela soit pour une géométrie cylindrique ou parallélépipédique.

L'angle solide est défini par les équations 7.2 et 7.3 si la géométrie considérée est une source ponctuelle et le détecteur de forme parallélépipédique, comme le présente la figure 7.2 [Tsoulfanidis 95].

$$\Omega_i = \frac{1}{4\pi} \arctan \left(\frac{a_i b_i}{d \sqrt{a_i^2 + b_i^2 + d^2}} \right) \quad (7.2)$$

$$\Omega_{total} = \sum_{i=1}^4 \Omega_i \quad (7.3)$$

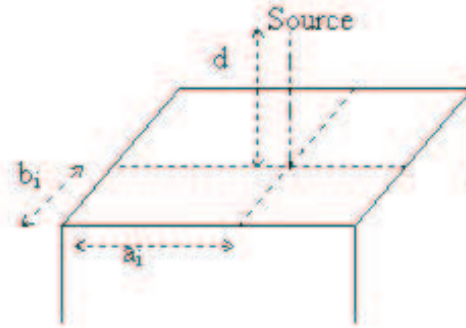


FIG. 7.2: Méthode utilisée pour le calcul de l'angle solide

Compte tenu de la géométrie cylindrique utilisée pour une partie des simulations, la démarche présentée sur la figure 7.3 a été adoptée pour le calcul de l'angle solide. La simulation consiste à approximer le cylindre vu par la source à un parallélépipède rectangle. L'angle solide ainsi défini peut être évalué pour des détecteurs cylindriques grâce aux équations 7.3 et 7.4.

$$D = \left(\frac{r}{l + r} \right) * l \quad (7.4)$$

7.2. SIMULATION NEUTRONIQUE À L'AIDE DE MCNP

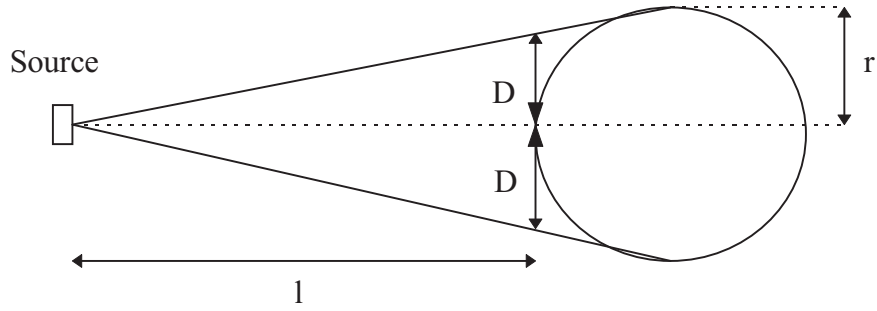


FIG. 7.3: Géométrie du dispositif simulé pour une source ponctuelle et un scintillateur cylindrique (vue en coupe).

$$\Omega = \frac{1}{\pi} \arctan \left(\frac{\frac{\left(\frac{r}{r+l}\right) \cdot l \cdot H}{4}}{d \sqrt{\left(\frac{\left(\frac{r}{r+l}\right) \cdot l\right)^2}{4} + \frac{H^2}{4} + d^2}} \right) \quad (7.5)$$

L'angle solide total pour un détecteur parallélépipédique est donné par la relation **7.5**. Il varie uniquement en fonction de sa longueur. Pour un cylindre, l'angle solide total dépend de son rayon, pour une longueur constante.

L'ensemble des valeurs d'angle solide est consigné dans le tableau **7.1** pour les deux géométries. Comme l'angle solide pour le cylindre varie de façon significative en fonction du rayon, les deux angles solides extrêmes ont été calculés et notés pour une hauteur donnée. Par contre, pour le parallélépipède, cette variation n'est pas significative, donc quelle que soit l'épaisseur, l'angle solide a été considéré comme constant pour une hauteur fixée.

	Hauteur	Angle solide minimum	Angle solide maximum
Cylindre	15 cm	$0,69 \cdot 10^{-3}$ sr	$3,52 \cdot 10^{-3}$ sr
	30 cm	$1,35 \cdot 10^{-3}$ sr	$6,87 \cdot 10^{-3}$ sr
	45 cm	$1,95 \cdot 10^{-3}$ sr	$9,93 \cdot 10^{-3}$ sr
	60 cm	$2,47 \cdot 10^{-3}$ sr	$12,62 \cdot 10^{-3}$ sr
Parallélépipède rectangle	15 cm		$3,50 \cdot 10^{-3}$ sr
	30 cm		$6,84 \cdot 10^{-3}$ sr
	45 cm		$9,88 \cdot 10^{-3}$ sr
	60 cm		$12,56 \cdot 10^{-3}$ sr

Tableau 7.1: Variation de l'angle solide en fonction de la géométrie du détecteur

Il a été tenu compte de ces valeurs d'angle solide afin de s'affranchir d'une partie de l'effet dû à la géométrie du détecteur pour les résultats des simulations neutroniques présentés dans le paragraphe suivant.

Résultats

Le code MCNP donne comme résultat un flux de particules par cm^2 . Ce résultat est alors normalisé en tenant compte du matériau et de la section efficace se rapportant au type de réaction nous intéressant. Le résultat intermédiaire est alors exprimé en nombre d'évènements par cm^3 , satisfaisants aux critères d'intérêt fixés. Connaissant le volume du détecteur étudié, il est alors possible d'obtenir finalement le nombre total d'interactions qui ont eu lieu dans le détecteur pour un type de réaction donnée et normalisé pour un neutron simulé. Cette information permet, par simulations successives de différentes géométries, d'optimiser le détecteur afin de maximiser l'efficacité de détection du dispositif.

Les résultats concernant les détecteurs cylindriques sont présentés sur la figure 7.4. La géométrie cylindrique permet d'envisager une fabrication en laboratoire (Cf. chapitre 3). De plus, cette géométrie permet la conception d'ensembles de détection plus favorables intrinsèquement à la propagation de la lumière générée par le phénomène de scintillation. Les résultats relatifs aux détecteurs parallélépipédiques sont présentés sur la figure 7.5. Cette géométrie permet la réalisation de grand ensemble de détection par superposition de plusieurs détecteurs élémentaires. Un dispositif plan de grande surface est alors envisageable.

Quelle que soit la longueur du détecteur simulé, il apparaît toujours un plateau à partir de 35 mm de rayon pour les détecteurs cylindriques et de 30 mm de rayon pour les détecteurs parallélépipédiques. D'après le spectre en énergie des neutrons simulés, le nombre moyen maximal de chocs qu'ils peuvent réaliser est inférieur à 13. Le différentiel entre les optima pour les détecteurs parallélépipédiques et ceux pour les détecteurs cylindriques est purement d'origine géométrique et provient du fait qu'un cylindre peut être inscrit dans un parallélépipède rectangle.

La simulation pour le détecteur cylindrique laisse apparaître une courbure du tracé pour les faibles rayons. Cette courbure est nettement moins prononcée que pour les détecteurs parallélépipédiques. La figure 7.6 permet d'appréhender plus précisément le point à partir duquel la courbe atteint son palier, c'est dire le diamètre du cylindre à partir duquel la majorité des neutrons entrants ont été statistiquement thermalisés. Ainsi, pour les détecteurs cylindriques, un rayon de 35 mm semble être suffisant pour cette tâche. L'efficacité de thermalisation des scintillateurs plastiques dopés au Bore est alors optimale pour ce diamètre. La courbe plafonne alors pour des diamètres plus importants, ce qui signifie qu'en moyenne les neutrons incidents ont réalisé le nombre de chocs moyens nécessaires pour effectuer leur complète thermalisation.

La simulation par MCNP est une simulation de type Monte Carlo et à ce titre statistique. Les neutrons, dont l'énergie est peu probable, car à la limite supérieure du spectre de Watt simulé, ne sont pas tous thermalisés pour cette épaisseur ou ce diamètre optimal. Leur contribution au résultat final de la simulation est alors faible puisqu'elle dépend directement de leur poids statistique dans le spectre en énergie. Ainsi, les optimums trouvés ne permettent pas de thermaliser complètement les neutrons dont l'énergie est supérieure

7.2. SIMULATION NEUTRONIQUE À L'AIDE DE MCNP

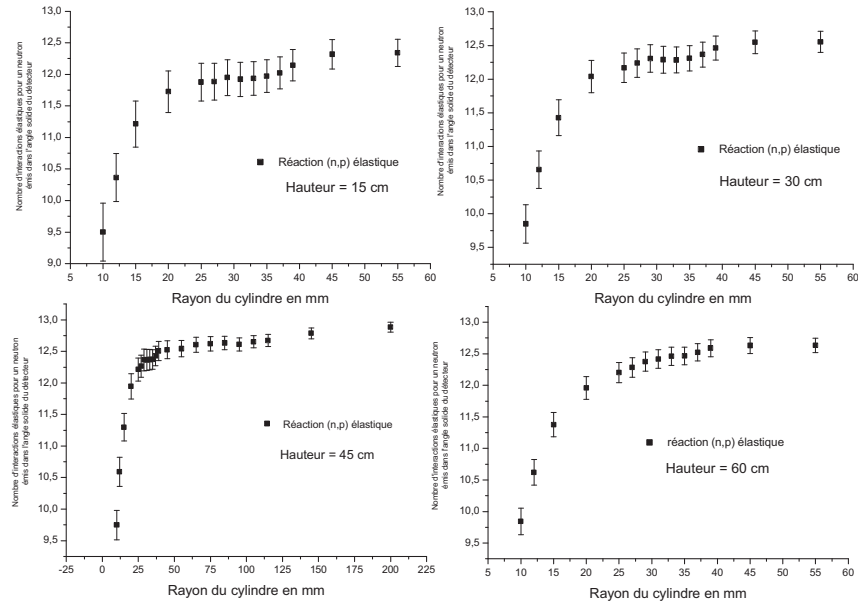


FIG. 7.4: Optimisation du diamètre des cylindres simulés pour des détecteurs de différentes longueurs

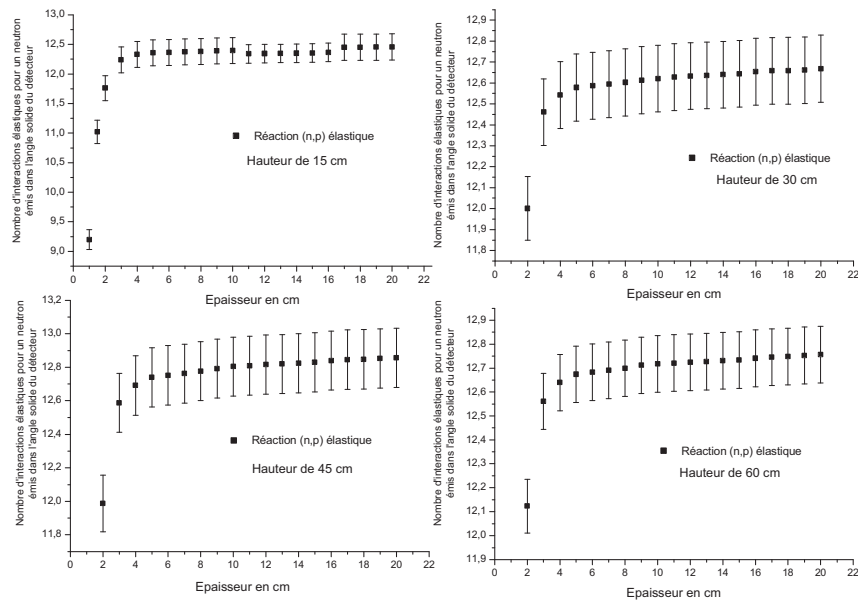


FIG. 7.5: Optimisation de l'épaisseur du détecteur parallélépipédique pour différentes longueurs

ou égale à plusieurs MeV, c'est à dire aux neutrons situés dans l'extrémité haute du spectre neutronique simulé.

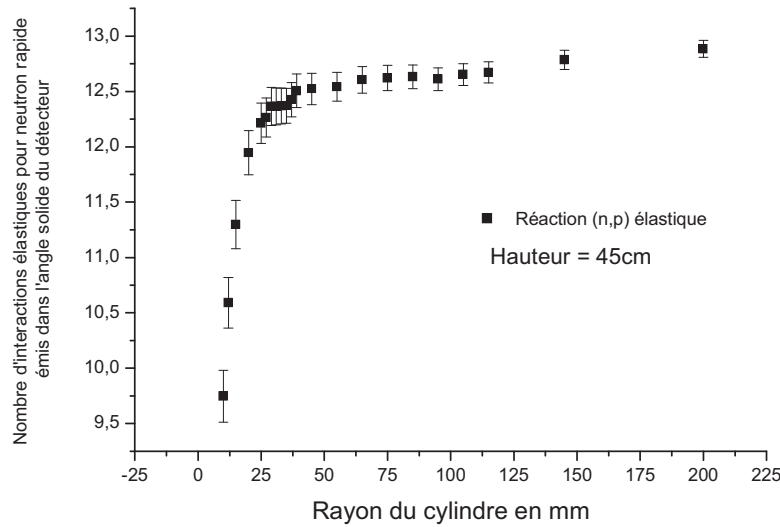


FIG. 7.6: Optimisation du diamètre d'un scintillateur dopé au bore cylindrique pour thermaliser l'ensemble des neutrons incidents dont le spectre en énergie est centré sur 500 keV et s'étale jusqu'à 4 MeV.

Les barres d'erreurs observables sur les figures sont les erreurs calculées par MCNP. Elles dépendent directement de l'écart type statistique sur les valeurs estimées par le code et donc du nombre de particules simulées. Elles résultent également de l'écart type intrinsèque lié à la physique. Il correspond aux processus propres se produisant au sein du détecteur. Les simulations réalisées lors de ce travail ont conduit à la génération de 1 million de neutrons, ce qui est suffisant pour atteindre l'écart type intrinsèque.

Ces simulations ont donc permis d'optimiser la géométrie du détecteur en fonction des neutrons rapides dont le spectre en énergie est proche de celui observé pour les neutrons provenant des fûts de déchets.

7.2.4 Nombre de chocs nécessaires pour thermaliser un neutron

Avec le code de calcul utilisé, il est possible d'estimer le nombre moyen de choc nécessaires pour thermaliser un neutron incident d'une énergie donnée, comme le montre la figure 7.7.

Pour des faibles épaisseurs de scintillateur, le neutron de 1 MeV réalise plus de collisions que le neutron de 3 MeV. Ceci s'explique par le fait qu'à 1 MeV, le neutron est plus rapidement thermalisé qu'à 3 MeV. Or comme le parcours entre deux collisions dépend de l'énergie du neutron, moins il dispose d'énergie plus il aura de chance d'entrer en collision avec un noyau du milieu traversé. Par contre, à partir de 3 cm d'épaisseur, la tendance s'inverse. En effet, le neutron de 1 MeV est complètement thermalisé alors que le neutron de 3 MeV n'a pas fini son parcours, il dispose, encore, d'une certaine quantité d'énergie à

7.2. SIMULATION NEUTRONIQUE À L'AIDE DE MCNP

perdre. Ainsi, le neutron de 3 MeV fait presque un choc de plus que celui de 1 MeV pour une même énergie finale de 25 meV.

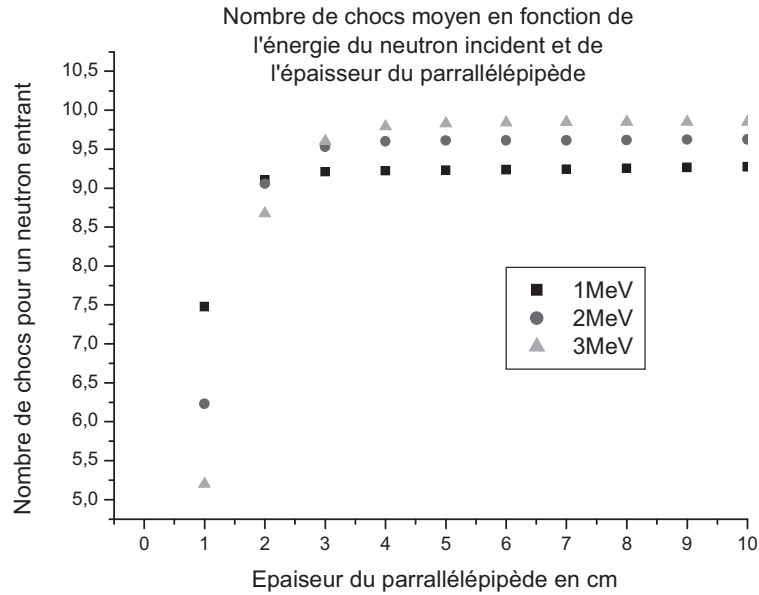


FIG. 7.7: Nombre de chocs nécessaires pour thermaliser un neutron en fonction de son énergie incidente.

Pour un scintillateur plastique dopé au Bore, le nombre moyen de chocs pour thermaliser un neutron de 3 MeV est de 10 diffusions élastiques de type (n,p). Si ce résultat est comparé à celui obtenu précédemment pour la thermalisation des neutrons de fission simulés par le spectre de Watt, il apparaît qu'il faut statistiquement 3 diffusions supplémentaires pour thermaliser les neutrons de fission, issus du spectre de Watt précédemment défini, par rapport aux neutrons de 3 MeV. Ceci est compréhensible à la vue de la distribution en énergie des neutrons du spectre de fission de Watt simulé (Cf. spectre présenté sur la figure 7.1).

7.2.5 Durée de vie d'un neutron dans ce type de scintillateur dopé

Ce code de calcul permet également de réaliser des études temporelles de l'interaction des neutrons avec la matière. Ainsi, le temps que met un neutron pour être thermalisé et capturé a pu être estimé par simulation.

Les résultats concernant la thermalisation sont représentés sur la figure 7.8. Il apparaît qu'en quelques dizaines de ns le neutron a perdu l'essentiel de son énergie. Dès lors, la vitesse du neutron se réduit à 2190 m.s^{-1} (vitesse d'un neutron pour une énergie de

25 meV). Le neutron met alors un certain temps avant de pouvoir être capturé par un noyau de Bore 10. C'est ce qui peut être observé sur la figure 7.9.

Il faut noter que la durée de vie du neutron, donc le temps qu'il faut pour qu'il soit capturé, dépend directement de la densité de noyau de Bore 10 présent. En l'occurrence dans le cadre de cette étude, le chargement du scintillateur plastique en Bore 10 est de 1 % en masse. Les auteurs, comme Drake [Drake 86], ont montré que compte tenu de ce chargement en Bore 10 du scintillateur plastique dopé, la durée de vie théorique d'un neutron est de $2,74 \mu s$ (Cf. équation 7.6 où N_{10B} est le nombre de noyaux cible de Bore 10 par unité de volume, σ est la section efficace de capture et V est la vitesse du neutron).

$$\tau = \frac{1}{N_{10B} \cdot \sigma \cdot V} \quad (7.6)$$

En effet, la distance moyenne que doit parcourir un neutron thermalisé pour rencontrer un noyau de Bore 10 dépend directement de la densité en noyaux de Bore 10 contenu dans le matériau car sa vitesse ne varie presque pas et correspond à celle de l'énergie thermique.

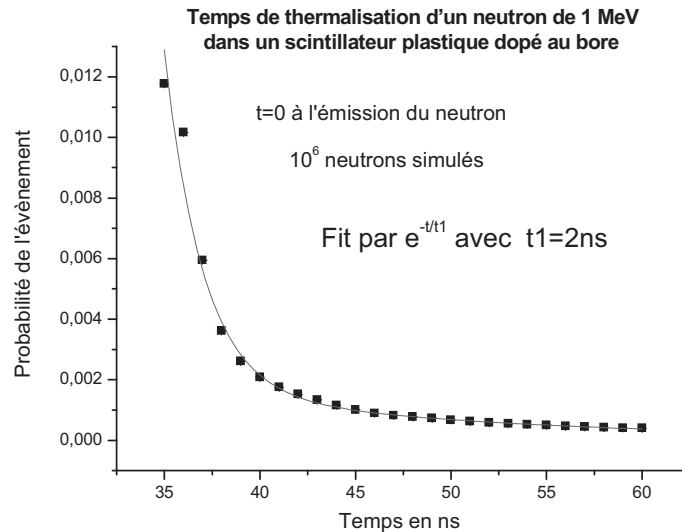


FIG. 7.8: Temps nécessaire pour qu'un neutron passe d'une énergie de 1 MeV à une énergie de 25 meV dans un scintillateur plastique dopé au bore

Au bout de $4 \mu s$, l'essentiel des neutrons de 1 MeV ont été thermalisés et capturés par un noyau de Bore 10.

Pour les figures 7.8 et 7.9, la somme des probabilités, c'est à dire l'aire sous la courbe, est égale à l'unité.

La durée de vie d'un neutron rapide pénétrant dans un scintillateur plastique dopé au Bore ne dépasse pas quelques μs ce qui est nettement moins que pour un dispositif utilisant une série de détecteurs à Hélium 3 noyés dans une structure en polyéthylène, puisque

7.2. SIMULATION NEUTRONIQUE À L'AIDE DE MCNP

typiquement la durée de vie du neutron est estimée entre $60 \mu\text{s}$ et $120 \mu\text{s}$ pour ce type de dispositifs de détection [Drake 86]. Le détecteur intervient dans ce temps mort mais l'électronique de mise en oeuvre prend une part importante également dans cette durée de vie. Or l'électronique de mise en oeuvre n'a pas été simulée par ce travail concernant les scintillateurs.

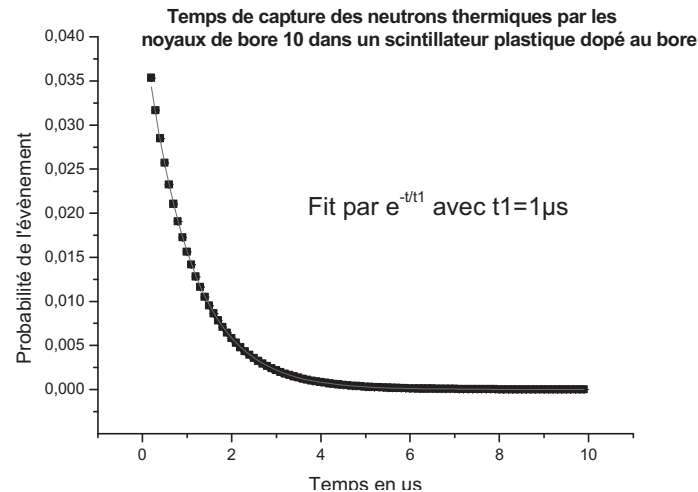


FIG. 7.9: Durée d'une capture d'un neutron de 1 MeV dans un scintillateur plastique dopé au bore

Le chronogramme sur la figure 7.10 présente schématiquement l'enchaînement des événements que subit un neutron rapide pénétrant dans un scintillateur plastique dopé au Bore et terminant son histoire en étant capturé par un noyau de Bore 10. Seules les premières collisions de thermalisation génèrent suffisamment de signal pour être prises en compte par la chaîne de mesure, c'est ce qui correspond au pic appelé thermalisation sur la figure 7.10. Le temps qui sépare l'impulsion de thermalisation de celui qui correspond à la capture du neutron est une donnée statistique. Il représente le temps mis par le neutron pour finir de perdre son énergie par collisions (n,p) élastiques qui ne génèrent pas assez de photons de scintillation pour que le signal soit exploitable. Il comprend également le temps nécessaire pour que le neutron, une fois thermalisé, soit capturé par un noyau de Bore 10. Le phénomène même de thermalisation est régi par les lois statistiques et dépend également de l'énergie du neutron incident. En effet, plus l'énergie du neutron est faible plus la probabilité qu'il soit capturé augmente (Cf. courbe de section efficace de réaction (n, α) des neutrons sur des noyaux de Bore 10).

7.2.6 Efficacité globale de détection

Afin de comparer les efficacités de détection des scintillateurs plastiques dopés au Bore à celles des structures utilisant des détecteurs à Hélium 3, une étude comparative a été conduite sur l'atelier A.C.C. (Atelier de Compactages des Coques et embouts) de

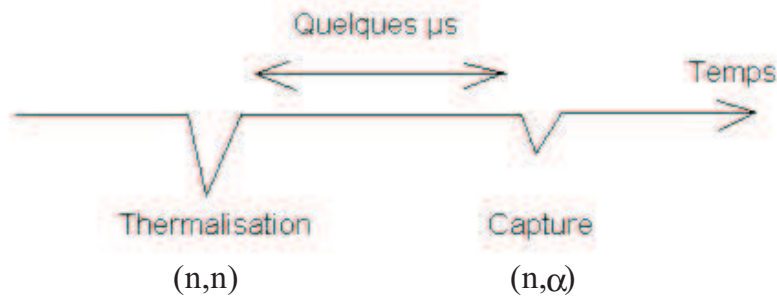


FIG. 7.10: Chronogramme de l'histoire d'un neutron dans un scintillateur plastique dopé au Bore

COGEMA la Hague. La géométrie adoptée est la même pour les deux types de détecteurs, elle est présentée sur la figure **7.11**. En fait, seul le matériau de détection a été modifié. En lieu et place de l'Hélium 3 dans les structures détectrices, le scintillateur plastique, dopé à 5 % en masse de Bore naturel a été simulé.

La cellule de mesure est constituée de 3 blocs de 82 détecteurs installés en quinconce sur deux rangées. L'objectif est de couvrir l'angle solide maximal afin d'avoir une efficacité de détection des neutrons thermiques la plus importante possible. Ainsi, le dimensionnement des épaisseurs de polyéthylène est tel que la majorité des neutrons pénétrant dans le dispositif soit thermalisée au niveau des détecteurs à Hélium 3. De plus, une épaisseur supplémentaire de polyéthylène a été placée derrière les détecteurs à Hélium 3 afin de servir de réflecteur (albédo) aux neutrons qui seraient passés une première fois sans interagir au travers des deux rangées de détecteurs car n'étant pas suffisamment thermalisés. Ce dispositif permet ainsi d'améliorer l'efficacité de détection, en augmentant la probabilité d'interaction des neutrons avec les détecteurs.

Les résultats sont présents pour les trois blocs de détecteurs sur la figure **7.12**. La forme en arc de cercle de l'efficacité de détection provient du fait que le fût de déchets dans lequel la source de neutrons uniformément répartie est simulée est moins long que les détecteurs. La perte de comptage provient donc d'un effet purement géométrique. Dans ce cas, l'efficacité de détection est maximale pour les détecteurs situés au centre du bloc.

Dans le cas où seuls des scintillateurs plastiques dopés au Bore seraient utilisés, l'efficacité globale de détection des neutrons thermiques est alors améliorée par un facteur 100 pour la première rangée de détecteur et 10 pour la seconde rangée par rapport au même dispositif utilisant des détecteurs à base d'Hélium 3. Le phénomène de creusement de flux apparaît également très nettement lors de cette étude. Il est plus important pour les scintillateurs que pour les détecteurs à gaz à Hélium 3 en raison de la plus grande opacité vis à vis des neutrons thermiques dont disposent les scintillateurs plastiques dopés au Bore par rapport aux détecteurs utilisant l'Hélium 3.

Dans le cadre de cette étude, seule la sensibilité aux neutrons thermiques a été simulée.

7.2. SIMULATION NEUTRONIQUE À L'AIDE DE MCNP

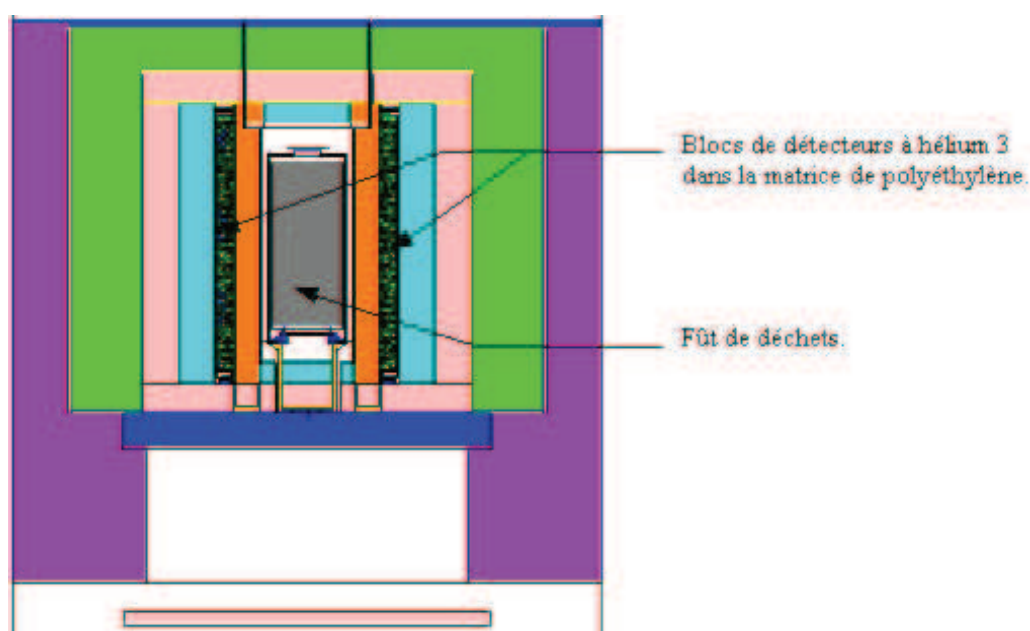


FIG. 7.11: Géométrie du dispositif de détection de l'A.C.C. simulée par MCNP

La possibilité de détection des neutrons rapides par les scintillateurs plastiques n'a pas été prise en compte.

Une rapide comparaison entre les détecteurs à Hélium 3 et les scintillateurs plastiques dopé au Bore permet sur le tableau 7.2 de constater que l'opacité aux neutrons thermiques est meilleure pour les scintillateurs que pour les détecteurs à base d'Hélium 3.

	Hélium 3	Scintillateur dopé au Bore
Section efficace de capture	5400 barn	3800 barns
Nombre de noyaux cibles par cm ³	$7,14 \cdot 10^{19}$	$5,59 \cdot 10^{20}$
Opacité pour 1 cm d'épaisseur	32 %	88 %
Opacité pour 6,5 cm d'épaisseur	91,34 %	99,99 %

Tableau 7.2: Efficacité de détection des neutrons thermiques pour les détecteurs à base de scintillateurs plastiques dopés au Bore et les détecteurs à base d'Hélium 3

Ce tableau justifie donc l'appellation de "Black Neutron Detector" pour ces détecteurs, puisque 99,99 % des neutrons pénétrant dans ce scintillateur ne ressortent pas du détecteur. Ces résultats ont été obtenus pour un détecteur à Hélium 3 gonflés à 4 bars et un dopage du scintillateur plastique en Bore 10 de 1 % en masse par rapport au polystyrène.

En conclusion, les simulations neutroniques grâce au code MCNP ont permis d'optimiser le diamètre des détecteurs pour que la majorité des neutrons incidents (dont le spectre en énergie est connue) soit thermalisée et donc finalement capturée par un noyau de Bore 10. L'efficacité de détection des neutrons thermiques est plus importante pour

Comparaison compteurs à Hélium 3 et scintillateurs plastiques dopés au bore

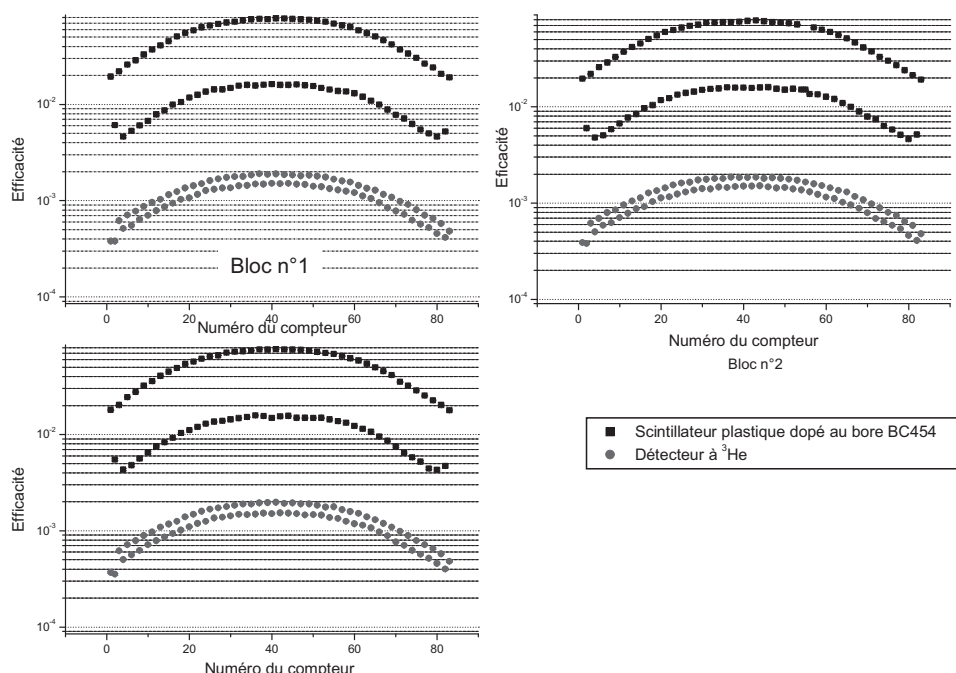


FIG. 7.12: Comparaison de l'efficacité de détection pour des scintillateurs dopés au bore et des détecteurs à base d'Hélium 3 mis en oeuvre dans l'A.C.C.

les scintillateurs plastiques dopés au Bore que pour les détecteurs à gaz à base d'Hélium 3. En augmentant l'efficacité de détection des neutrons, la sensibilité vis à vis du rayonnement gamma est également fortement intensifiée (Cf. chapitre 8 sur les méthodes de discrimination entre les neutrons et les gamma).

D'après les simulations effectuées, les domaines d'application vers lesquels s'orientent les utilisations de ce type de détecteur sont ceux des faibles activités tant neutroniques que gamma. L'exploitation de la double interaction (thermalisation et capture) des neutrons au sein du milieu scintillant permet également d'envisager une utilisation en tant que spectromètre à neutrons rapides (Cf. chapitre 9 sur les applications envisageables pour ce type de détecteur).

7.3 Simulation de la production et de la propagation de la lumière

7.3.1 Présentation du code de calcul

Ce code de calcul a été développé pour des expériences du CERN mettant en jeux des mesures de temps de vols utilisant des scintillateurs plastiques de type NE102 pour des

7.3. SIMULATION DE LA PRODUCTION ET DE LA PROPAGATION DE LA LUMIÈRE

Pions de 1 GeV/c d'impulsion [Yang 95]. Il se nomme SToF, acronyme de "Simulation of Time of Flight". Il permet de faire une étude du temps de vol et de l'analyse spectrale en charge pour des interactions entre les Pions et la matière.

Ce code génère les photons à partir de l'interaction entre le rayonnement incident et la matière. Cependant la gamme d'énergie pour laquelle il a été développé permet de considérer les particules au minimum d'ionisation. En effet, elles traversent toutes le détecteur compte tenu de leur forte impulsion. A partir de cette information sur le dépôt d'énergie (via la formule de Bethe) il est alors possible d'obtenir le nombre de photons générés. Le nombre de photons dépend alors directement de l'énergie de la particule. D'ailleurs, comme ces particules sont au minimum d'ionisation, les paramètres de luminescence du scintillateur sont les mêmes quelle que soit la particule considérée. De plus, l'émission des photons est réalisée tout au long de la trajectoire dans la matière de la particule.

La longueur d'onde des photons de scintillation générés est obtenue en effectuant un tirage de type Monte Carlo sur un spectre de fluorescence de type gaussien (centré sur 425 nm pour ce qui concerne nos simulations) caractérisant ainsi l'émission de lumière du scintillateur simulé. La polarisation des photons est également réalisée par tirage aléatoire. Chacun de ces photons obtenus est alors suivi par le code de calcul jusqu'à ce qu'il soit :

- ▷ réfléchi sur une interface scintillateur - milieu extérieur. Le code de calcul tient compte alors de :
 - la polarisation du photon,
 - la différence d'indice des milieux,
- ▷ absorbé par le matériau,
- ▷ absorbé par la photocathode du photomultiplicateur.

En cas d'absorption par la photocathode, le code de calcul tient compte du rendement quantique de la photocathode. A partir de cette donnée, le code calcule le nombre de charge disponible sur l'anode du photomultiplicateur en tenant compte du gain du photomultiplicateur. En considérant la constante RC du pont diviseur et la charge appliquée à l'anode, le code en déduit le type d'impulsion présente à l'anode. De plus, connaissant la charge présente aux bornes de l'anode, le code écrit dans un fichier tous les événements codés sur une échelle graduée en canaux où chaque canal correspond à une charge.

De l'ensemble des informations précédentes, il est alors possible d'obtenir un spectre en charge correspondant à l'interaction des ions avec le matériau scintillant. C'est ce spectre en charge qui peut être étudié afin d'observer et d'analyser la réponse du scintillateur soumis à un faisceau particulier d'ions.

7.3.2 Modifications apportées à ce code de calcul

Le domaine énergétique et le type de particule auxquels cette étude s'est intéressée sont différents de ceux prévus initialement par les concepteurs du code SToF. Il a donc fallu adapter certaines parties du code de calcul pour qu'il tienne compte des ions que génère l'interaction des neutrons avec la matière. Les paramètres de luminescence mesurés lors du chapitre 6 ont également été incorporés dans le code afin de rendre compte le plus fidèlement possible du comportement de production de lumière des scintillateurs plastiques dopés au Bore.

Les deux parties profondément remaniées concernent :

- 1 - Les fichiers PTRAC générés par MCNP doivent être rendus lisibles en entrée du code de calcul SToF. La partie pertinente de la structure des fichiers PTRAC est la suivante :
 - position (x,y,z),
 - cosinus des vecteurs directeurs du neutron après interaction,
 - énergie avant et après interaction, type d'interaction (élastique, réaction nucléaire),
 - type de noyau collisionné,
 - durée de l'interaction.
- 2 - Les domaines d'énergies des ions sont différents. Il faut donc implémenter les coefficients de Birks et la loi de Birks qui permettent, en fonction de l'énergie et du type d'ion généré de connaître le nombre de photons que le code doit générer. Les ions générés par l'interaction neutronique ne sortent pas du scintillateur en raison de leur parcours dans la matière qui ne dépasse pas quelques dizaines de μm .

Une partie d'interface a été réalisée afin de reprendre les informations en provenance du fichier généré par la carte résultat PTRAC émise par le code de calcul MCNP et de les transformer en informations servant de base pour la génération et la propagation de la lumière dans le scintillateur.

Les données concernant les protons, les ions alpha et Lithium (en l'absence de données, ce sont celles des alpha qui ont été ré-utilisées) ont été intégrées à partir des résultats présentés lors du chapitre 6.

Le code de calcul développé au cours de ce travail ne prend pas en compte les interactions entre les neutrons rapides et les carbones. En effet, il a été montré par Drogg [Drogg 80] que la contribution à la production de lumière des ions Carbone de recul qui sont produits lors des chocs avec les neutrons rapides est négligeable par rapport aux autres contributions dues par exemple aux protons ou aux alpha. En effet, lors d'une collision élastique, l'énergie maximale transmissible par le neutron à un noyau de Carbone ne représente que 28 % de l'énergie initiale, alors qu'elle est de 100 % dans le cas d'un choc frontal avec un noyau d'Hydrogène [Knoll 89].

7.3. SIMULATION DE LA PRODUCTION ET DE LA PROPAGATION DE LA LUMIÈRE

7.3.3 Influence de la géométrie sur la collecte des photons

Ce code peut également être utilisé seul. Dans ce cas les ions sont générés en interne par le code de calcul lui-même. La position d'émission, l'énergie et le type d'ions sont alors définis par l'utilisateur. Ainsi, l'utilisation du code en mode propagation de lumière seul permet d'analyser l'influence de la géométrie du scintillateur sur les propriétés de collection de lumière dans le scintillateur.

Ce code ne prend pas en compte les revêtements éventuellement présents à la surface du scintillateur. Il considère qu'il y a toujours une réflexion de type spéculaire ou une transmission du photon vers l'extérieur en tenant compte des propriétés de réfraction de la lumière par les matériaux et le milieu extérieur (différence d'indice de réfraction). Dans ce dernier cas, tout photon sortant du scintillateur est considéré comme perdu.

La figure 7.14 montre que le lieu d'émission du photon est important sur l'efficacité de collection de la lumière par la photocathode du photomultiplicateur.

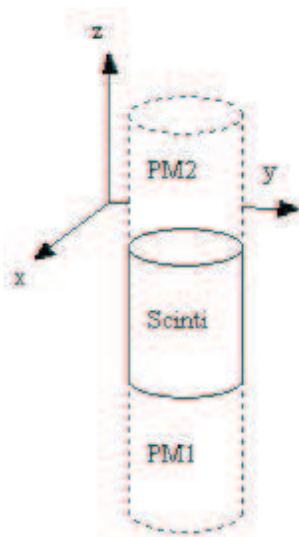


FIG. 7.13: Disposition des photomultiplicateurs et du scintillateur simulée par le code de calcul STof

La géométrie adoptée pour cette simulation est présentée sur la figure 7.13. Un photomultiplicateur a été simulé aux deux extrémités du cylindre. Le code de calcul permet de distinguer les réponses provenant d'un photomultiplicateur par rapport à l'autre. Seul un quart du scintillateur est représenté sur la figure 7.14. En effet, par symétrie de révolution, il est possible d'en déduire l'ensemble des résultats pour tout le volume du scintillateur. La figure 7.13 présente la configuration retenue pour la simulation par le code de calcul.

A la vue des résultats présentés sur la figure 7.14, il apparaît clairement que les photons ont d'autant plus de chance d'arriver sur la photocathode qu'ils sont émis loin

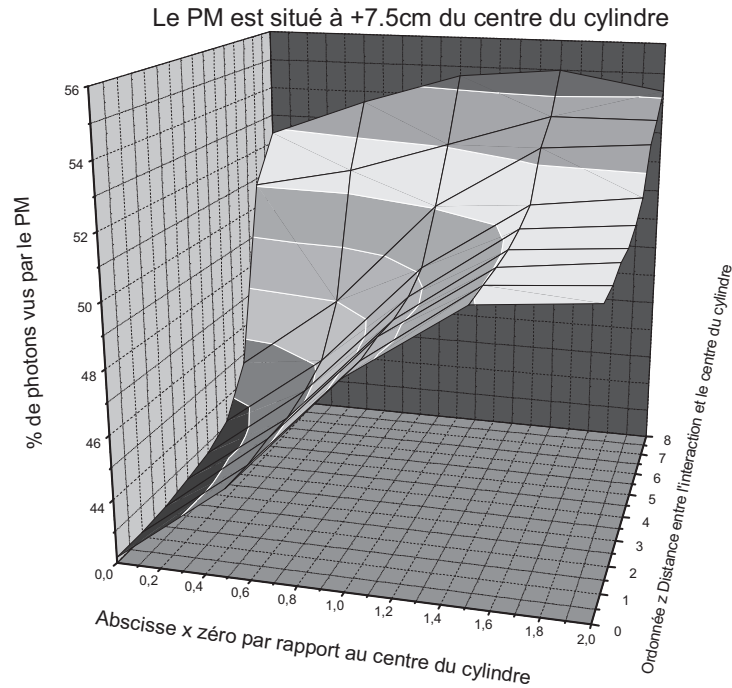


FIG. 7.14: Influence du lieu de génération des photons sur leur probabilité de collecte au niveau de la photocathode.

de l'axe de symétrie de révolution du scintillateur (donc proche de l'interface entre le scintillateur et le milieu extérieur) et qu'ils sont émis à proximité de la photocathode. En effet, l'angle selon lequel les photons de scintillation sont émis est d'autant plus favorable à une réflexion totale qu'ils sont émis à proximité de l'interface scintillateur - air. Sur cette figure, le photomultiplicateur est situé à $z=7,5$ cm du centre du cylindre. Donc le résultat décrit précédemment est valable pour un z grand et x grand. Cette simulation ne tient pas compte d'un éventuel revêtement présent à la surface du scintillateur, c'est pourquoi, la quantité de photons collectée par le photomultiplicateur n'est pas égale à 100 %, sur l'axe vertical.

7.3.4 Génération de photons pour des alpha et des protons

Le code de calcul permet de sélectionner la position de l'émission de la particule. Les figures 7.15 et 7.16 présentent les résultats du code de calcul pour des ions (proton et alpha) tous simulés comme étant émis à partir de la position (0,0,0) (donc au centre du scintillateur) pour une énergie variant de 500 keV à 3 MeV. Le spectre de charge présente un pic qui correspond aux ions ainsi simulés. Le fait de les placer au centre du scintillateur permet aux deux photomultiplicateurs de recevoir exactement la même quantité de photons puisque l'émission de lumière est isotrope. Les résultats pour les deux photomultiplicateurs sont totalement identiques compte tenu du fait que le lieu d'émission

7.4. COUPLAGE DES DEUX CODES DE SIMULATION

de la particule est centré par rapport à la géométrie du scintillateur.

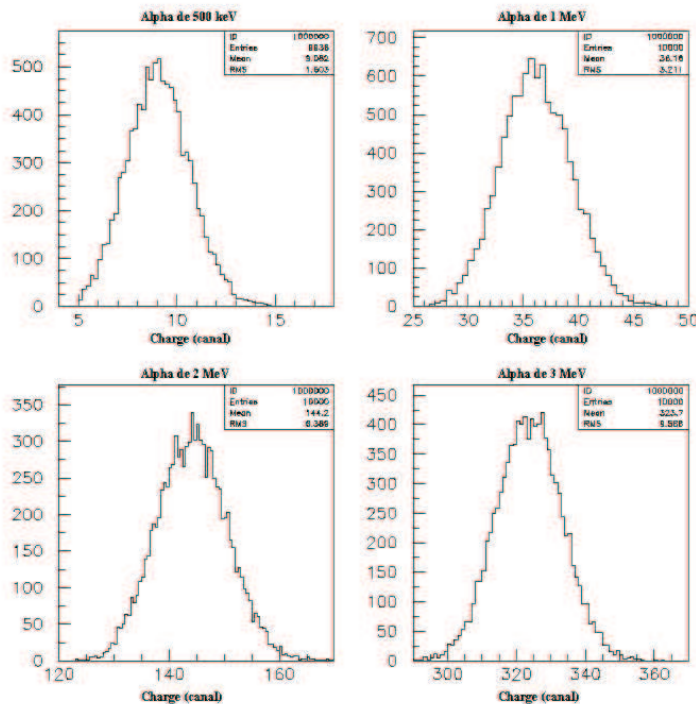


FIG. 7.15: Spectres simulés par le code de calcul STof des charges générées au niveau du photomultiplicateur par des particules alpha de différentes énergies.

Cette simulation permet de vérifier le fait qu'un alpha produit une charge finale, et donc un nombre de photons de scintillation, plus faible qu'un proton, pour une même énergie et une même position d'interaction. La distribution gaussienne des charges s'explique par les phénomènes de dispersion des photons de scintillation tant sur les différents parcours optiques envisageables que sur leurs longueurs d'onde² et donc sur l'efficacité quantique de la photocathode du photomultiplicateur.

7.4 Couplage des deux codes de simulation

7.4.1 Pourquoi ce couplage ?

Le code de calcul MCNP est un code de transport neutronique. La génération et la propagation des photons sont assurées par STof. Le raccordement entre ces deux codes de calcul s'effectue par l'intermédiaire d'un fichier spécifique généré par la carte résultat

²La longueur d'onde des photons de scintillation est obtenue par tirage Monte Carlo sur un spectre gaussien centré autour de la longueur d'onde de 425 nm.

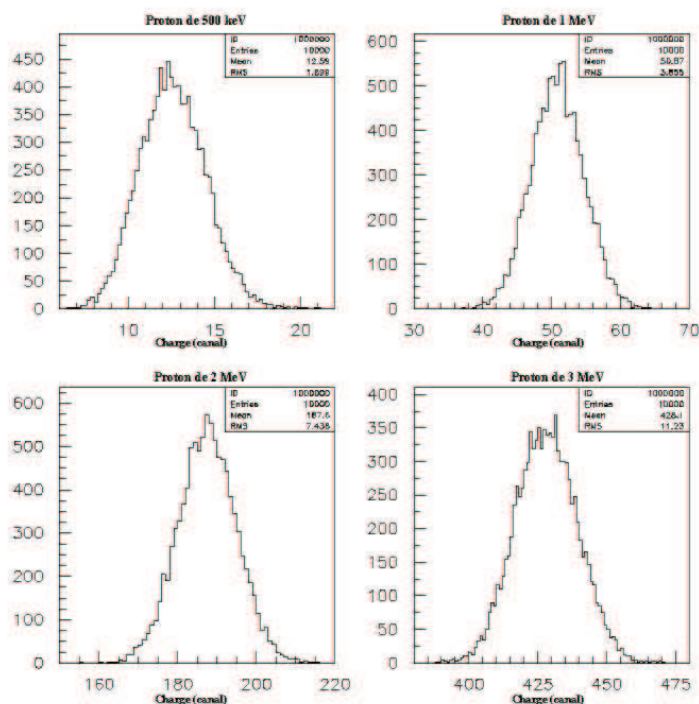


FIG. 7.16: Spectres simulés par le code de calcul SToF des charges générées au niveau du photomultiplicateur par des protons de différentes énergies.

PTRAC du code MCNP. Ce fichier est la mémoire de l'historique de la "vie" d'un neutron dans le scintillateur plastique dopé au Bore.

Seul Martin [Martin 81] s'est intéressé à la réponse neutronique globale d'un scintillateur non dopé. Or, le dopage introduit une sensibilité supplémentaire vis à vis des neutrons thermiques et donc modifie notablement la réponse lumineuse finale du scintillateur.

7.4.2 Démarche adoptée

La réponse neutronique du scintillateur est simulée par MCNP. Les neutrons sont émis de façon isotrope en direction du scintillateur dont la géométrie est la même que celle utilisée pour la simulation SToF (cylindre de 15 cm de long et de 4 cm de diamètre).

L'organigramme présente, sur la figure 7.17, le synoptique de fonctionnement du couplage entre les deux codes de calcul. Les données provenant du code de calcul MCNP sont reformatées pour les rendre intelligibles par SToF. A chaque interaction neutronique, le code SToF choisit les paramètres adaptés de la loi de Birks.

La production de lumière est alors simulée. Les photons de simulation sont considérés comme étant produits au lieu de l'interaction neutronique. En effet, les ions produits tant par les phénomènes de thermalisation que de capture ont un parcours très faible dans la

7.4. COUPLAGE DES DEUX CODES DE SIMULATION

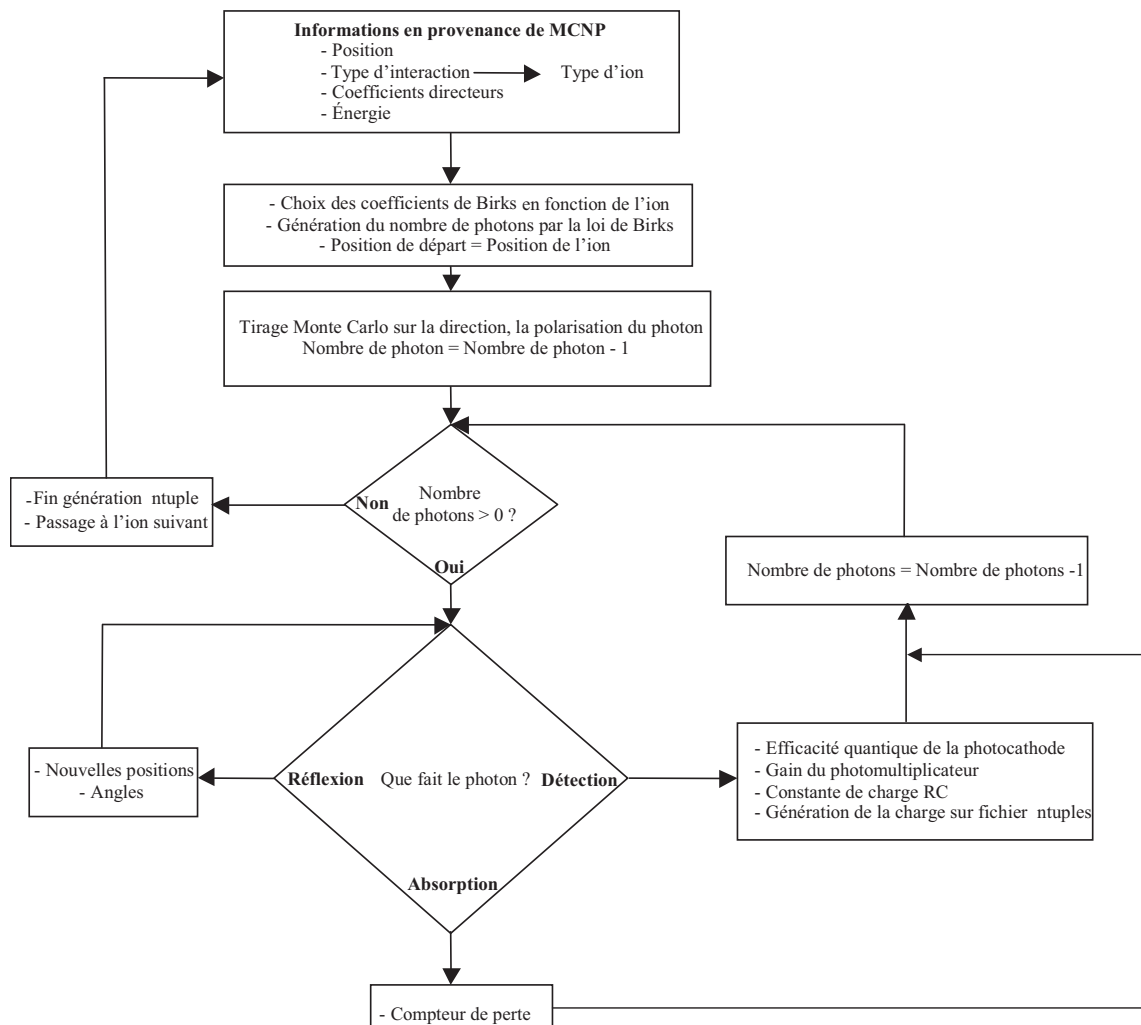


FIG. 7.17: Synoptique du couplage entre le code MCNP et le code de calcul de scintillation STOf.

matière car ils sont fortement ionisants (typiquement inférieur à $100 \mu\text{m}$). Chaque photon généré se voit alors attribuer une longueur d'onde obtenue par tirage Monte Carlo sur un spectre gaussien centré sur la raie principale d'émission du scintillateur, à savoir 425 nm . Sa direction est également obtenue par tirage Monte Carlo. Chaque photon est alors suivi individuellement. Ainsi, en fonction de l'absorption du matériau et du parcours du photon, celui-ci est soit absorbé soit réfléchi à l'interface scintillateur - air. Le processus précédent est réitéré jusqu'à ce que le photon disparaisse dans le matériau par absorption, ou jusqu'à ce qu'il induise un effet photoélectrique sur la photocathode. Le code de calcul tient alors compte (en fonction de la longueur d'onde du photon incident) de la courbe de rendement quantique de la photocathode et du gain du photomultiplicateur pour générer une charge qui est alors stockée dans un fichier.

Comme à chaque extrémité du scintillateur se trouve un photomultiplicateur, le pro-

E(MeV)	0,2	0,5	1	2	3	4	5	6
σ (barn)	9,6	6,5	4,5	3	3,3	1,9	1,6	1,31

Tableau 7.3: Quelques sections efficaces de diffusion élastique des neutrons sur les protons en fonction de l'énergie des neutrons incidents

blème est symétrique et deux charges sont générées pour une interaction neutronique dans le scintillateur, chacune correspondant à un photomultiplicateur.

7.4.3 Résultats de la simulation globale du scintillateur

Trois types de simulation ont été réalisés.

- 1 - La première met en oeuvre un scintillateur plastique non dopé. Seules les interactions élastiques (n,p) sont alors prises en compte. Il n'apparaît aucun pic sur la figure **7.18**, ce qui est normal compte tenu de la distribution en énergie des protons de reculs générés par les neutrons rapides sur le scintillateurs plastiques non dopé. En effet, l'énergie des protons de recul est donnée par l'équation **7.7** [Surugues 75].

$$E_{proton} = \frac{E_{neutron}}{2} \cdot (1 - \cos(\phi)) \quad (7.7)$$

Où ϕ est l'angle que fait le vecteur vitesse du neutron incident et celui du neutron diffusé immédiatement après le choc. La probabilité pour que les protons de recul diffusent entre un angle ϕ et $\phi + d\phi$ est donné par l'équation **7.12**.

$$\frac{d\Omega}{4\pi} = \frac{2\pi}{4\pi} \cdot \sin(\phi) \cdot d\phi \quad (7.8)$$

$$P(E_p) \cdot dE_p = \frac{1}{2} \cdot \sin(\phi) \cdot d\phi \quad (7.9)$$

$$\text{Or } dE_p = \frac{E_n}{2} \cdot \sin(\phi) \cdot d\phi \quad (7.10)$$

$$\text{Donc } P(E_p) \cdot \frac{E_n}{2} \cdot \sin(\phi) \cdot d\phi = \frac{1}{2} \cdot \sin(\phi) \cdot d\phi \quad (7.11)$$

$$\text{D'où } P(E_p) = \frac{1}{E_n} \quad (7.12)$$

Ainsi, il apparaît que la probabilité de diffusion augmente avec la diminution de l'énergie du neutron. Autrement dit, les chocs à faible énergie entraînent des angles de diffusion importants. A titre informatif, le tableau **7.3** donne l'évolution de la section efficace de diffusion des neutrons sur les protons en fonction de leur énergie. Si l'énergie des neutrons est inférieure à 2,5 keV alors la section efficace σ est quasiment constante et égale à 20,4 barns.

Le spectre en charge observé sur la figure **7.18** ne présente donc aucun pic d'après la distribution en énergie présentée précédemment pour les protons de recul. La probabilité d'avoir une charge de faible valeur est cependant plus important que celle d'avoir une charge de forte valeur, d'où la forme décroissante du spectre.

7.4. COUPLAGE DES DEUX CODES DE SIMULATION

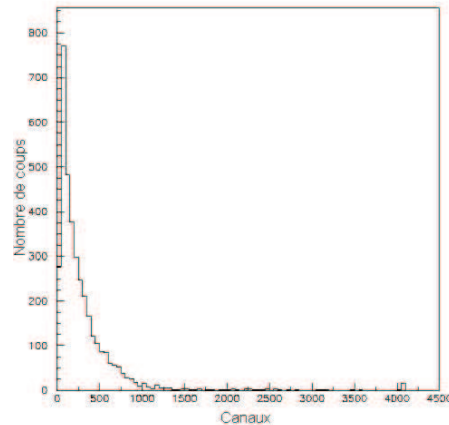


FIG. 7.18: Spectre simulé issu d'un scintillateur plastique non dopé irradié par des neutrons rapides

- 2 - La seconde met en oeuvre des particules alpha générées au centre du scintillateur plastique dopé au Bore (Cf. figure 7.19). Il apparaît une gaussienne correspondant à l'interaction des alpha avec le milieu. La valeur de la charge est donnée en canaux. L'échelle est ici deux fois plus grande, ce qui permet au pic de sortir autour du canal 237, alors qu'il sort autour du canal 500 pour les simulations décrites au § 7.3.4.

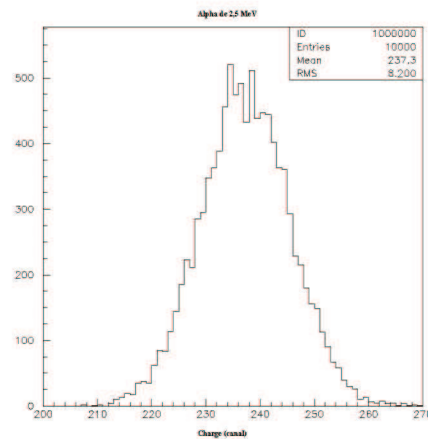


FIG. 7.19: Spectre obtenu pour des alpha générés au centre du scintillateur.

- 3 - La troisième représente le résultat de l'interaction neutronique dans un scintillateur plastique dopé au Bore et la réponse lumineuse associée. Elle est présentée sur la figure 7.20. Deux types d'interaction peuvent avoir lieu, à savoir des diffusions élastiques (n,p) et des réactions de capture (n, α). Le pic correspondant aux captures des neutrons thermiques par les noyaux de Bore 10 apparaît clairement. Le

phénomène d'atténuation provenant des réflexions multiples se retrouve lorsque la simulation prend en compte les interactions (n,α) sur le Bore 10 du scintillateur. La perte d'énergie des ions alpha et Lithium, produits lors des captures neutroniques, se retrouve sous forme de photons de scintillation. Ces photons sont émis de façon isotrope et disposent donc de plusieurs chemins optiques pour arriver sur la photocathode. Il apparaît alors deux bosses sur le spectre correspondant aux deux familles de chemins optiques que les paquets de photons ont pu suivre. Les ions alpha et Lithium générés par la capture neutronique ne sont pas émis à la position $(0,0,0)$, c'est à dire au centre du scintillateur. Ils sont, au contraire, émis dans tout le volume du scintillateur. C'est ce qui explique la différence entre le spectre gaussien présenté au § 7.3.4 et celui-ci.

Les photons de scintillation ainsi émis disposent de globalement deux types de chemins optique.

- Le premier (1) correspond aux photons qui sont allés directement sur la photocathode et n'ont pas effectué une seule réflexion. Ils correspondent donc au pic le plus à droite du spectre. Ces paquets de photons n'ayant pas été atténués, ils génèrent donc une charge plus importante au niveau du photomultiplicateur que leurs homologues dont le chemin optique est moins direct.
- Le second (2) correspond aux groupes de photons qui ont dû effectuer une ou plusieurs réflexions avant d'interagir avec la photocathode. Ces paquets de photons sont donc plus atténués que ceux qui n'ont pas effectué de réflexion. Le pic qu'ils génèrent est donc situé vers des charges plus faibles que le pic des photons n'ayant effectué aucune réflexion. De plus, la dispersion est plus importante, le pic est donc plus large. Cette population de paquets de photons est plus importante que celle effectuant un parcours lumineux direct en raison d'une probabilité plus importante pour les photons d'avoir un chemin optique avec au moins une réflexion.

L'ensemble de ces simulations couplées permet de modéliser la réponse globale d'un scintillateur plastique dopé au Bore lorsqu'il est soumis à un flux neutronique.

7.4.4 Comparaison avec un spectre neutron expérimental

Une grande similitude peut être observée entre la courbe correspondant au scintillateur plastique dopé au Bore du spectre expérimental présenté sur la figure 7.22 et le spectre simulé présenté sur la figure 7.20. Sur le spectre simulé des neutrons rapides, obtenu pour un scintillateur plastique non dopé présenté sur la figure 7.18 seules les interactions de type (n,p) élastiques sont prises en compte. Aucun pic caractéristique n'apparaît sur cette courbe simulée et sur celle mesurée correspondant au scintillateur plastique non dopé présentée sur la figure 7.22. La distribution correspond bien à la répartition en énergie des neutrons rapides qui peut être mesurée. Sur le spectre simulé présenté sur la figure 7.19, il

7.4. COUPLAGE DES DEUX CODES DE SIMULATION

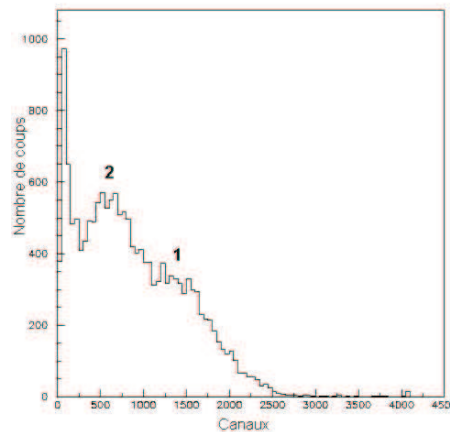


FIG. 7.20: Spectre simulé issu d'un scintillateur plastique dopé au Bore irradié par un flux de neutrons rapides

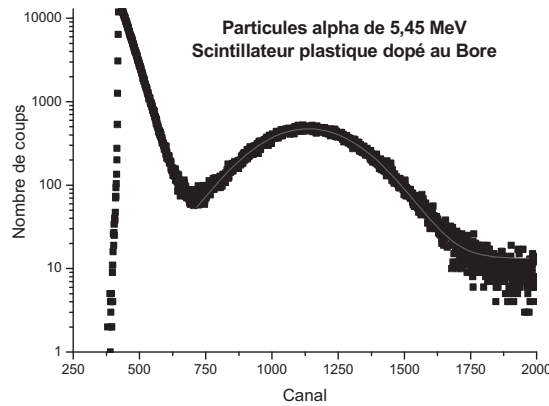


FIG. 7.21: Spectre obtenu pour des alpha de 5,45 MeV interagissant directement avec un scintillateur plastique dopé au Bore

apparaît une forme semblable à celle obtenue expérimentalement pour des alpha avec un scintillateur plastique dopé au Bore qui est présenté par exemple sur la figure 7.21. Sur ce spectre, les deux pics précédemment cités ne sont pas visibles. Pour tester cette hypothèse, il aurait fallu injecter les particules alpha sur le centre et sur le bord du scintillateur.

Ainsi, si les spectres neutroniques expérimentaux obtenus sur la figure 7.22 pour un scintillateur plastique non dopé et un scintillateur plastique dopé au Bore sont comparés, il apparaît une forte analogie de forme avec les spectres simulés présentés sur les figures 7.18 et 7.20.

Une amélioration de la simulation consisterait à prendre en compte les interactions dues aux rayonnements gamma avec le matériau scintillant. Ceci permettrait de conclure quant à l'influence des gamma sur le spectre final observé et simulé.

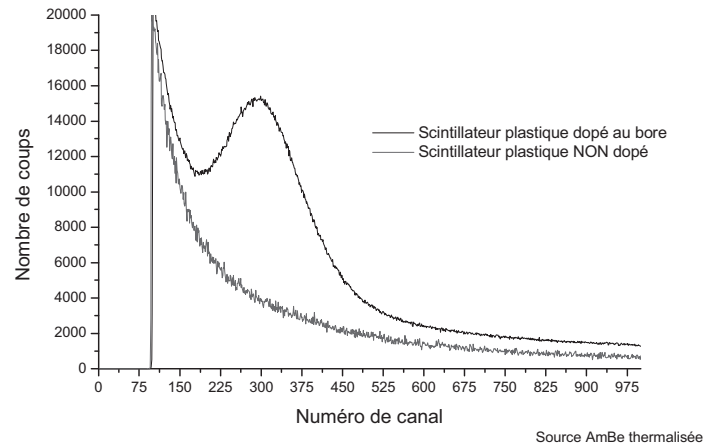


FIG. 7.22: Comparaison du spectre neutronique d'un scintillateur plastique non dopé et d'un scintillateur plastique dopé au Bore

En conclusion, il est possible de combiner le code de calcul MCNP avec un code de génération et de transport de la lumière. Les résultats donnés par cette simulation sont comparables à ceux obtenus de façon expérimentale.

Chapitre 8

Discrimination neutron - gamma

Comme présenté dans le chapitre précédent, l'efficacité de détection neutronique est très bonne pour les scintillateurs plastiques dopés au Bore. En contrepartie, leur sensibilité vis à vis du rayonnement gamma est beaucoup plus importante que celle des détecteurs à Hélium 3. Il faut donc mettre en oeuvre des méthodes de discrimination pour distinguer les signaux neutroniques des signaux gamma.

8.1 Principes de la discrimination de particules

8.1.1 Sensibilité vis à vis du rayonnement gamma

La problématique de la discrimination de particules dans les scintillateurs est ancienne. En effet, déjà [Winyard 71] et [Winyard 72] avaient fait un article de synthèse sur les méthodes disponibles à leur époque. Quant à Brooks, il avait dès la fin des années 50 développé des méthodes de discrimination pour séparer les signaux neutroniques de ceux provenant des gamma [Brooks 59]. Cependant, ces méthodes dépendent des progrès que peuvent réaliser les dispositifs électroniques. Elles sont donc en perpétuelle évolution et amélioration.

Les scintillateurs sont très sensibles aux rayonnements gamma. Si les sections efficaces gamma pour les détecteurs à Hélium 3 et les scintillateurs plastiques dopés au Bore sont comparées sur les figures 8.1 et 8.2, il apparaît une nette différence en faveur de l'Hélium 3. Cette différence de sensibilité vis à vis du rayonnement gamma est d'autant plus accentuée que les détecteurs à base d'Hélium 3 sont sous forme gazeuse contrairement aux scintillateurs plastiques qui sont solides. L'effet prépondérant du rayonnement gamma sur les scintillateurs est l'effet Compton, ce qui est confirmé par la courbe de section efficace présentée sur la figure 8.2.

Par simulation avec le code MCNP, en mode photons, il est possible d'estimer les sensibilités gamma respectives pour les détecteurs à base d'Hélium 3 et les scintillateurs plastiques dopés au Bore. L'énergie des gamma est obtenue par tirage Monte Carlo par le code MCNP sur un spectre en énergie centré autour de 500 keV et s'étalant jusqu'à 4 MeV. Le tableau 8.1 présente les résultats de ces simulations pour des géométries

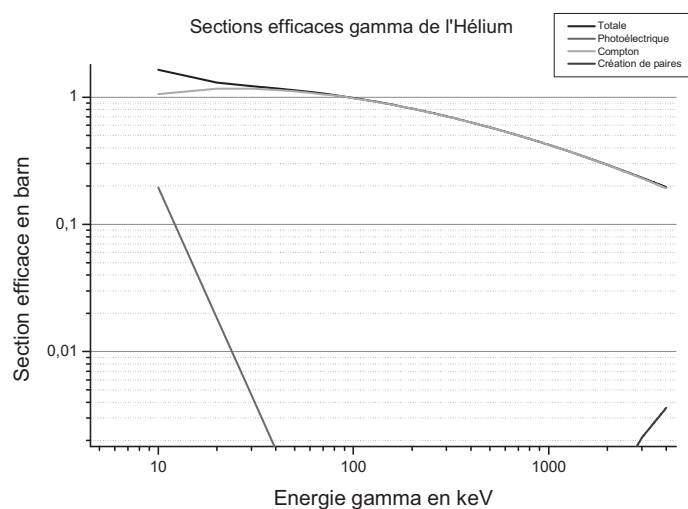


FIG. 8.1: Section efficace d'interaction des gamma avec l'Hélium 3 en fonction de leur énergie.

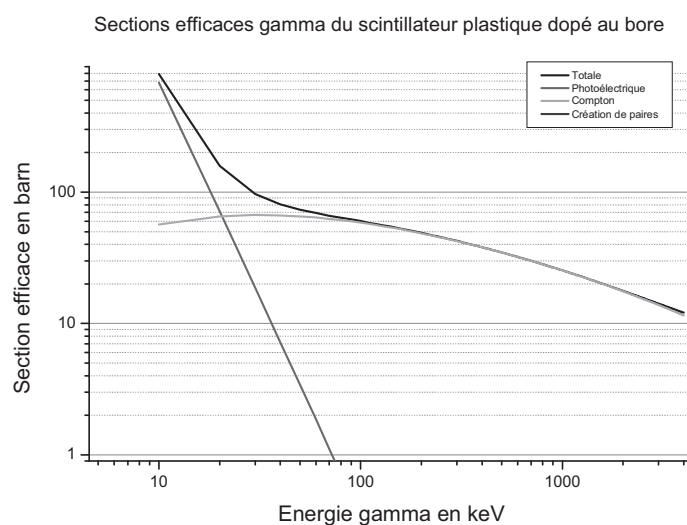


FIG. 8.2: Section efficace d'interaction des gamma avec un scintillateur plastique dopé à 5 % en Bore naturel.

de détecteurs identiques (cylindre de 15 cm de long et 4 cm de diamètre). Ainsi, les scintillateurs apparaissent globalement plus sensibles aux gamma que les détecteurs à base d'Hélium 3.

8.1. PRINCIPES DE LA DISCRIMINATION DE PARTICULES

	Total	Photoélectrique	Compton	Thomson
Scintillateur	$1,75 \cdot 10^{-5} \pm 0,9\%$	$8,68 \cdot 10^{-7} \pm 1\%$	$1,58 \cdot 10^{-5} \pm 1\%$	$7,91 \cdot 10^{-7} \pm 1\%$
Hélium 3	$9,21 \cdot 10^{-10} \pm 1\%$	$4,84 \cdot 10^{-13} \pm 36\%$	$9,16 \cdot 10^{-10} \pm 1\%$	$3,13 \cdot 10^{-12} \pm 7,6\%$

Tableau 8.1: Probabilité d'interaction pour un gamma incident en fonction du type d'interaction. Simulation réalisée grâce au code MCNP

L'ensemble de ces résultats montre que les scintillateurs sont environ 19 000 fois plus sensibles que les détecteurs à base d'Hélium 3 (rapport entre la probabilité totale d'interaction gamma du scintillateur et du détecteur à base d'Hélium 3).

8.1.2 Problématique de la discrimination

Certains auteurs ont présenté les méthodes analogiques disponibles. Ils ont, en outre, explicité les variations des performances de discrimination de particules des scintillateurs selon la concentration en quencheurs présents [Brooks 59]. Par exemple, l'Oxygène est un excellent quencheur des états triplets. Or ces états sont d'autant plus peuplés que la particule qui a interagi est lourde et ionisante. C'est cette propriété qui permet de séparer les signaux des différentes particules qui ont interagi dans le scintillateur. La présence d'Oxygène dans le scintillateur dégrade donc les performances du matériau en ce qui concerne la discrimination de particules.

Outre les propriétés physiques intrinsèques du scintillateur, les dimensions du scintillateur peuvent également influencer sur ses capacités à séparer les signaux. L'atténuation de la lumière est d'autant plus importante que le trajet optique est grand. Les signaux lumineux issus de l'interaction des neutrons avec le scintillateur sont généralement de faibles amplitudes. Ils sont donc difficiles à extraire du bruit de fond gamma environnant. Les seuils doivent alors être réglés avec soin afin d'éviter de mélanger les signaux gamma aux signaux neutrons [German 81].

L'état physique dans lequel se trouve le scintillateur joue également un rôle important sur ses capacités de séparation de signaux. Les scintillateurs liquides ont été découverts après les scintillateurs solides. Ils présentent de meilleures propriétés de discrimination de particules par un meilleur peuplement des états triplets [Berlman 73]. Il se traduit alors par une fluorescence retardée qui est d'autant plus importante que la particule qui a interagi a un fort pouvoir ionisant. Les deux constantes de décroissance de la fluorescence sont très éloignées l'une de l'autre puisque la constante principale se situe autour d'une ns alors que la constante secondaire qui correspond aux états à vie longue se situe autour de 100 ns. Pour les scintillateurs plastiques, la constante principale se situe autour de quelques ns, par contre la constante secondaire est comprise entre 10 et 20 ns [Ahmed 77]. Or la discrimination entre les différentes particules ayant interagi avec le scintillateur est d'autant meilleure que la différence entre les deux constantes de décroissance est grande. Ainsi, les signaux provenant de différentes particules sont mieux séparés pour les scintillateurs liquides par rapport aux scintillateurs solides.

Le principal problème des scintillateurs liquides est leur trop grande inflammabilité. Malgré des recherches récentes [Majewski 98] qui ont permis d'obtenir récemment des scintillateurs liquides avec des points éclairs plus élevés, le risque d'incendie et de non confinement rendent ce type de scintillateur quasiment inexploitable sur une installation industrielle. En effet, les risques d'incendie induisent des contraintes de sécurité très importantes.

8.2 Méthodes de discrimination

8.2.1 Rappels bibliographiques

Deux méthodes sont principalement utilisées pour la discrimination de particules dans les scintillateurs. Elles sont toutes les deux basées sur le fait que le maximum de l'intégrale du signal n'est pas atteint au même instant selon le type de particules ayant interagi. En d'autres termes, la charge dans la queue de l'impulsion (qui correspond à la désexcitation des états triplets) est d'autant plus importante que la particule qui a interagi est fortement ionisante.

Il existe une première méthode basée sur une électronique analogique. Elle met en oeuvre des opérations mathématiques appliquées directement sur les signaux analogiques issus du photomultiplicateur. Elle consiste à intégrer le signal puis à différencier le signal intégré, c'est à dire la charge. Le moment où le signal différencié (donc la dérivée de la charge) passe par la ligne de base (ou le zéro) dépend du type de particule.

Les utilisateurs disposent également d'une seconde méthode qui est basée sur une numérisation de la charge du signal. Elle consiste à intégrer le signal, c'est à dire à obtenir les charges contenues dans l'impulsion, puis à les numériser pour stockage et exploitation. Cette méthode permet ensuite de comparer la charge contenue dans la globalité du signal à celle contenue dans la queue du signal.

D'ailleurs, Moris [Moris 76] et Wolski [Wolski 95] ont réalisé une comparaison des performances entre ces deux méthodes. Ils ont montré que la méthode du passage par zéro donne les meilleurs résultats avec les scintillateurs liquides qu'ils avaient utilisés pour cette expérience de comparaison. De plus, le seuil de discrimination obtenu était très bas, puisqu'il correspondait à 30 keV_{ee}^1 . Ce résultat correspond à une mise en oeuvre pointue de la méthode de discrimination étudiée.

Seuls Ranucci [Ranucci 95] et Cao [Cao 98] ont essayé de réaliser une approche analytique des capacités de discrimination des particules en fonction des paramètres physiques décrivant le scintillateur. Ce modèle ne fonctionne pas pour des scintillateurs complexes comme ceux utilisés et développés lors de cette étude. Les propriétés de discrimination

¹ 1 keV équivalent électron : la particule étudiée génère une quantité de photons équivalente à celle qu'aurait généré un électron de 1 keV. Cette notion est souvent utilisée car la réponse des scintillateurs est quasi-linéaire pour les électrons.

8.2. MÉTHODES DE DISCRIMINATION

entre les neutrons - gamma des scintillateurs liquides ont été étudiées précisément lors de la collaboration DEMON [Moszynski 92] et notamment la méthode de la comparaison de charge. Il apparaît que les scintillateurs organiques liquides du type NE213 ont de très bonnes propriétés de séparation des signaux grâce à la grande différence entre les deux constantes de décroissance temporelle de l'émission de lumière.

Il est clair que la forme et la taille du scintillateur peuvent également dégrader les propriétés de discrimination neutrons - gamma à cause des difficultés de collection de lumière qui peuvent apparaître [Moszynski 94].

Autant la discrimination entre les neutrons de fortes énergies et les gamma peut être réalisée avec une relative facilité [Onge 75] et [Glasgow 74], autant il peut être difficile de séparer ces deux types de signaux pour la gamme d'énergie comprise entre l'énergie thermique et 100 keV [Moszynski 92] pour les scintillateurs organiques liquides et quelques MeV pour les scintillateurs organiques solides. Certains auteurs ont également mis en évidence une dépendance des propriétés de discrimination de particules en fonction d'une élévation de température [Chalupka 77] ou au contraire d'une baisse allant jusqu'au gel pour certains scintillateurs liquides [Britvich 98].

La discrimination entre les neutrons et les gamma a déjà été réalisée avec des scintillateurs organiques liquides dopés au Bore [Greenwood 79]. Par contre, aucune expérience n'a jusqu'alors été rapportée dans la littérature pour les scintillateurs plastiques dopés au Bore. Préalablement à la présentation de ces méthodes, le paragraphe suivant introduit les différences observables entre les différents signaux provenant d'interactions gamma ou alpha avec les scintillateurs plastiques dopés au Bore.

8.2.2 Signaux observables

Deux types d'expériences ont été menées : une première mettant en oeuvre une seule source de particules alpha et une seconde mettant en oeuvre une source combinée de particules alpha et de bêta. En effet, les particules alpha sont caractéristiques de la détection des neutrons thermiques par un scintillateur plastique dopé au Bore alors que les bêta (donc les électrons) sont caractéristique de l'interaction des gamma avec le matériau scintillant. Ces deux expériences permettent donc une pré-étude des performances de discrimination entre les neutrons et les gamma pour les scintillateurs en l'absence de rayonnement neutronique.

Source alpha d'Américium 241

Pour cette série d'expériences, le dispositif décrit précédemment pour la caractérisation alpha des scintillateurs a été utilisé (Cf. chapitre 6). La source alpha utilisée sous vide primaire est une source d'Américium 241. Deux types de signaux sont observables sur la figure 8.3.

- Une première famille de faibles amplitudes qui correspond aux gamma de faible énergie (autour de 60 keV) émis lors de la désintégration alpha de l'Américium 241.

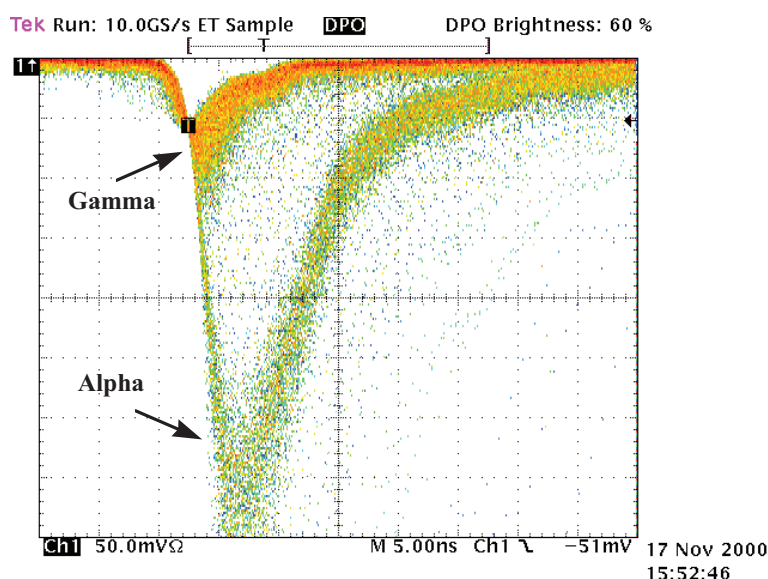


FIG. 8.3: Oscillogramme généré par une source alpha d' ^{241}Am interagissant sous vide avec un scintillateur plastique dopé au Bore.

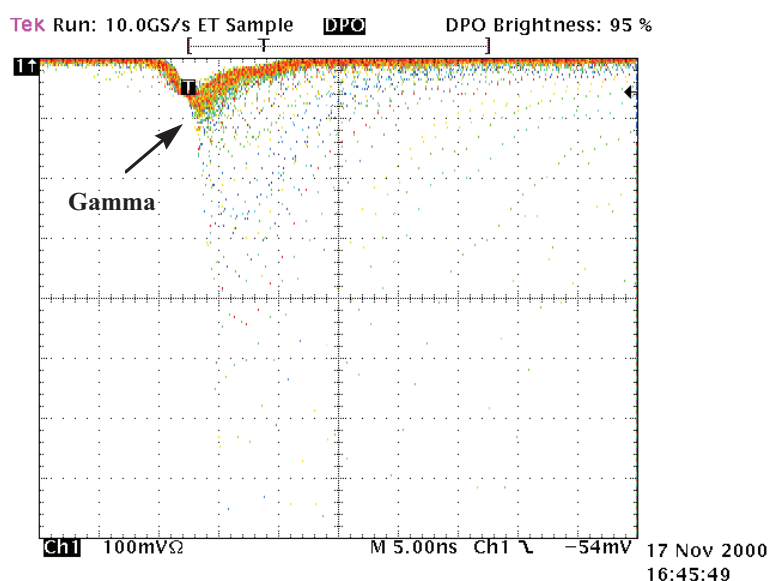


FIG. 8.4: Oscillogramme d'une source alpha d' ^{241}Am sous air.

- Une seconde famille, de plus grande amplitude apparaît sur l'oscillogramme. Cette population est la signature de l'interaction des alpha de 5,45 MeV avec le scintillateurs plastiques dopés au Bore.

Lors d'une seconde expérience, le vide est remplacé par de l'air. Une seule famille de points subsiste alors comme le montre la figure 8.4. En effet, seuls les gamma peuvent

8.2. MÉTHODES DE DISCRIMINATION

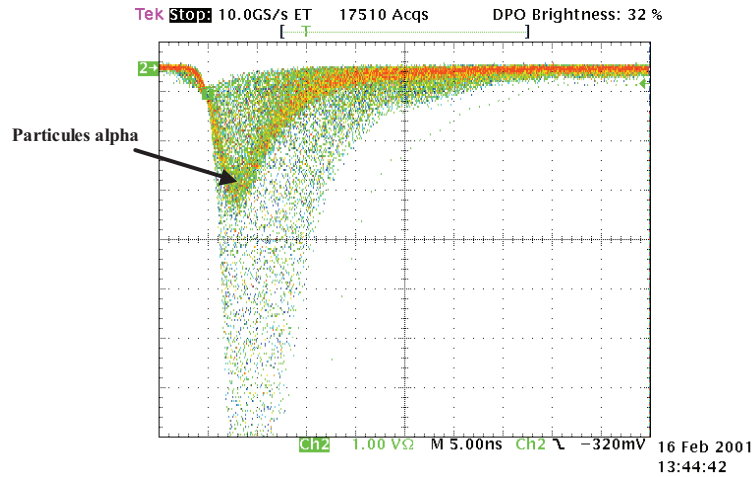


FIG. 8.5: Oscillogramme de la réponse d'un scintillateur plastique dopé au Bore lorsqu'il est soumis à une irradiation alpha (^{241}Am) et bêta (Sr-Y).

atteindre le scintillateur et interagir avec.

Source combinée Strontium-Yttrium et Américium 241

Dans le cadre de cette étude, une source a également été réalisée en partenariat avec le Laboratoire National Henri Becquerel (L.N.H.B.) du Département d'Application et de Métrologie des Rayonnements Ionisants. Cette source est constituée d'un mélange d'Américium 241 (émetteur alpha) et de Strontium-Yttrium² en équilibre séculaire. L'activité globale de la source est d'environ 400 Bq en alpha et 400 Bq en bêta. Ce mélange a été déposé sur la surface d'un scintillateur plastique cylindrique dopé au Bore de 50 mm de diamètre et de 2,5 cm d'épaisseur. Le scintillateur a été recouvert d'une peinture diffusante à l'oxyde de Titane sur toutes ses faces sauf une qui est couplée au photomultiplicateur.

Le spectre observable est présenté sur la figure 8.5. Cette figure montre une famille de points en sur-impression par rapport aux autres. Elle correspond aux particules alpha. En effet seuls les alpha disposent d'une énergie bien déterminée. Les bêta, générés par la source de Strontium - Yttrium, sont émis selon un spectre en énergie continu qui correspond à une certaine probabilité de distribution. Conformément aux prédictions de la loi de Birks, une particule alpha de 5,45 MeV génère beaucoup moins de photons de scintillations que des électrons (des bêta) d'une énergie maximale de 2 MeV.

De l'ensemble des spectres précédents, il apparaît que les particules peuvent être séparées selon leur pouvoir ionisant, c'est à dire leur masse, leur énergie et leur Z, dans les

²Cette source est un double émetteur bêta. $\beta_1 \rightarrow E_{\max} = 0,546 \text{ MeV}$ avec $E_{\text{moy}} = 0,195 \text{ MeV}$
 $\beta_2 \rightarrow E_{\max} = 2,28 \text{ MeV}$ avec $E_{\text{moy}} = 0,934 \text{ MeV}$

scintillateurs plastiques dopés au Bore. Il est possible d'envisager l'utilisation de méthodes de discrimination.

8.3 Méthode analogique : le passage par zéro

8.3.1 Mise en oeuvre expérimentale

Utilisant la propriété physique décrite précédemment (Cf. § 8.2), cette méthode analogique repose sur une série d'opérations mathématiques directement appliquées sur le signal. La hauteur de la queue de l'impulsion varie en fonction du type de particules qui ont interagi avec le scintillateur. Ainsi, le moment où le maximum de la charge, donc de l'intégrale du signal, est atteint dépend de la particule qui a interagi. Cette méthode est largement utilisée à la fois pour les scintillateurs organiques et les inorganiques [Pai 89].

Dans un premier temps, comme le montre la figure 8.6, le signal d'anode est intégré afin d'obtenir la charge du signal. Puis, le signal intégré est différencié afin d'obtenir l'instant de passage du signal intégré par le maximum de la charge. Un discriminateur à fraction constante permet, en outre, de déclencher le début du codage temporel avec le début du signal quelle que soit l'amplitude de l'impulsion issue du photomultiplicateur. Si ce signal alimente l'entrée "start" d'un convertisseur temps - amplitude et que l'entrée "stop" de ce même convertisseur est alimentée par le signal différencié, alors le temps que code le convertisseur temps - amplitude dépend de la particule qui a interagi dans le scintillateur. Enfin, le signal provenant du convertisseur temps - amplitude est envoyé sur un analyseur multicanaux qui permet de visualiser et d'analyser la qualité de la séparation entre les signaux.

La mise en oeuvre expérimentale est présentée sur la figure 8.7. L'intérêt du tiroir électronique N715 développé par la société CAEN est qu'il dispose au standard NIM de l'ensemble des fonctions mathématiques nécessaires au traitement du signal pour réaliser une discrimination de particules. Son fonctionnement permet, en outre, l'utilisation de deux photomultiplicateurs, un à chaque extrémité du scintillateur afin de maximiser la collecte des photons de scintillation. Il dispose donc de deux entrées, chacune correspondant à un photomultiplicateur. Dans le cadre de cette étude, une seule de ces deux entrées a été utilisée. L'autre a donc été connectée sur une charge de 50 Ω afin de maintenir l'adaptation d'impédance. L'électronique utilisée dans ce tiroir est présenté par Barnaba [Barnaba 98].

Le photomultiplicateur XP2020 est alimenté par une haute tension de 2 kVolts CAEN N470. Le convertisseur temps amplitude (T.A.C., "Time to Amplitude Converter") est un TAC 566 de la société ORTEC. L'analyseur d'amplitude multicanaux (M.C.A., "Multi Channel Analyzer") est une carte ORTEC TRUMP 8k connectée par un bus ISA à un PC.

L'entrée "Strobe" du tiroir N715 doit être alimentée par le signal provenant de la partie discriminateur à fraction constante (CFD, "constant fraction discriminator") afin de

8.3. MÉTHODE ANALOGIQUE : LE PASSAGE PAR ZÉRO

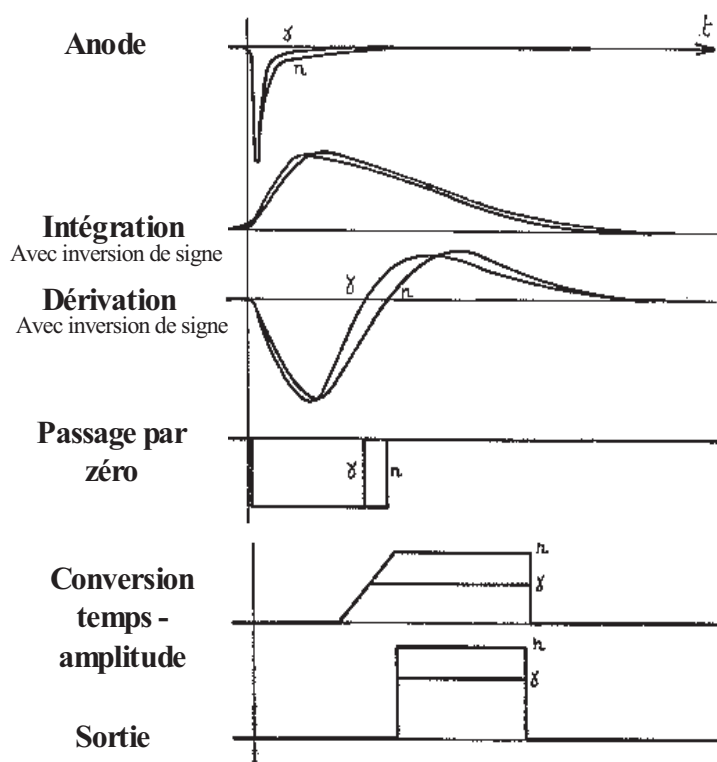


FIG. 8.6: Principe de la discrimination de particules par la méthode du passage par zéro

bloquer l'entrée du module pendant le traitement d'un signal. Ce dispositif évite alors la "collision", au cours du traitement électronique, de deux impulsions très proches temporellement l'une par rapport à l'autre.

8.3.2 Résultats

La source de neutrons utilisée est une source d'Américium-Beryllium de 100 mCi thermalisée ou non selon les besoins de l'expérience.

L'analyse des spectres en temps obtenus pour les scintillateurs testés conduit à la séparation des différentes particules recherchées. Trois familles de points apparaissent sur la figure 8.8 après avoir réalisé un ajustement d'une somme de trois gaussiennes sur le spectre obtenu pour un scintillateur plastique dopé au Bore. Ces trois courbes correspondent aux trois types de particules ayant pu interagir au sein du scintillateur testé.

La gaussienne correspondant aux plus faibles numéros de canaux est représentative des gamma (puisque le signal provenant de ce type de particules passe par zéro en premier). La gaussienne centrale correspond aux neutron rapides, puisque qu'elle représente les protons de recul. La gaussienne située à droite du spectre en temps correspond aux neutrons

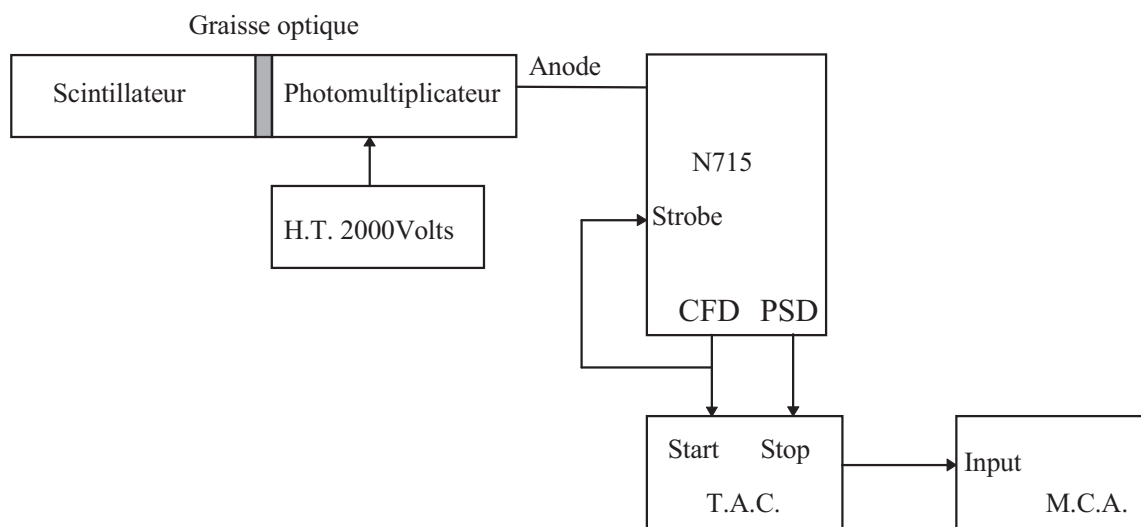


FIG. 8.7: Schéma du dispositif de discrimination neutron gamma par la méthode du passage par zéro.

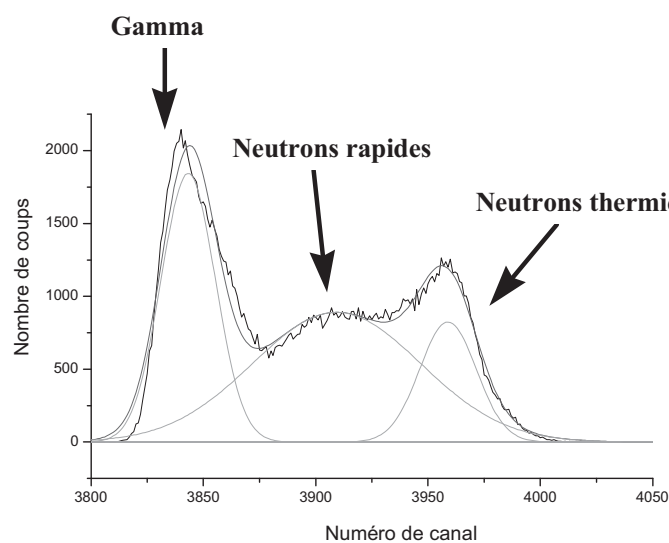


FIG. 8.8: Discrimination neutron - gamma mise en oeuvre pour un scintillateur plastique dopé au bore BC454. Source AmBe non thermalisée.

thermiques puisqu'elle représente les couples d'ions alpha - Lithium créés par les réactions de capture (n, α) sur le Bore 10. Ces deux dernières particules sont les plus ionisantes, donc ce sont elles qui peuplent le plus les états triplets du scintillateur par rapport aux protons de recul.

D'ailleurs, dans le cas d'un scintillateur plastique non dopé, seuls deux pics sont observables comme le montre la figure 8.9. En effet, dans ce cas, seuls deux types de particules

8.3. MÉTHODE ANALOGIQUE : LE PASSAGE PAR ZÉRO

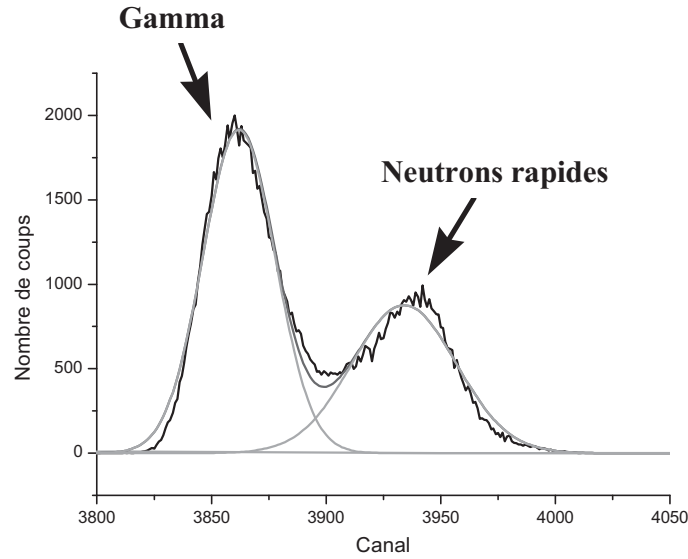


FIG. 8.9: Discrimination neutron rapide - gamma par la méthode du passage par zéro pour un scintillateur plastique non dopé. Source AmBe non thermalisée.

peuvent interagir au sein du scintillateur, les gamma et les neutrons rapides au travers des interactions élastiques (n,p).

Autant la détection des neutrons thermiques pénétrants dans le scintillateur ou créés au sein même du scintillateur est systématique, autant la détection des neutrons rapides par l'intermédiaire des noyaux d'Hydrogène du scintillateur dépend énormément de l'énergie déposée au cours du ou des chocs (n,p) élastiques que réalise le neutron rapide. Ainsi, le pic correspondant aux neutrons thermiques est plus étroit que celui correspondant aux neutrons rapides puisque l'énergie des ions alpha et Lithium, générés par la réaction de capture, est toujours la même (Q de la réaction).

Les ajustements de cette méthode doivent être très minutieux. En effet, comme il s'agit d'une méthode analogique, les réglages sont très sensibles aux dérives thermiques des composants constituant l'électronique du module N715. Durant les mesures de longues durées, il a été constaté un glissement des amplitudes temporelles. Ceci confirme que les dispositifs de compensation ne fonctionnent pas systématiquement de façon optimale. Ce problème peut se révéler gênant lors d'une utilisation en continu de l'électronique de traitement.

8.3.3 Performances de la méthode

Généralement, la qualité de la discrimination est donnée par la variable M qui est le rapport entre ΔC (l'intervalle qui sépare les deux pics étudiés) et la somme de leurs largeurs à mi-hauteur (FWHM), comme cela est détaillé par l'équation 8.1. Plus M est important, meilleure est la capacité de séparation des signaux de la part du dispositif de

discrimination.

$$M = \frac{\Delta C}{FWHM_{\gamma} + FWHM_n} \quad (8.1)$$

Le facteur M vaut 0,6 pour le couple (gamma - neutrons rapides), 2,1 pour le couple (gamma - neutrons thermiques) et 0,45 pour le couple (neutrons rapides - neutrons thermiques) de la figure 8.8. Le même facteur M vaut 1,1 pour le couple (gamma - neutrons rapides) sur la figure 8.9. Il est plus faible dans le cas d'un scintillateur plastique dopé au Bore. En effet, les propriétés de discrimination dépendent du type de molécules utilisées et de leur concentration. La composition du scintillateur plastique non dopé et de celui dopé sont différentes. Leurs performances respectives de discrimination sont donc différentes ce qui explique la bonne séparation des deux pics dans le cas du scintillateur non dopé et la moins bonne dynamique entre les pics pour le scintillateur dopé.

Des difficultés de séparation apparaissent dans le cas où le flux gamma devient important. Le traitement de l'information engendre un blocage de l'électronique de codage durant un laps de temps qui dépend des performances de l'électronique utilisée. D'après le concepteur du dispositif analogique N715, l'électronique de traitement est paralysée et n'arrive plus à traiter correctement toutes les impulsions entrantes au delà de 200 kHz (neutrons et gamma mélangés).

8.4 Méthode numérique : la comparaison de charges

Cette méthode a pu être mise en oeuvre dès que les progrès en électronique ont permis de réaliser des codeurs de charges suffisamment rapides pour traiter des impulsions physiques [Bell 81].

8.4.1 Mise en oeuvre expérimentale

Le dispositif expérimental est présenté sur la figure 8.10. Le signal provenant de l'anode du photomultiplicateur est séparé en deux parties par un "splitter" passif qui présente au niveau de son entrée et de ses deux sorties, une impédance caractéristique égale à 50 Ω . Ces deux signaux sont alors retardés de façon à ce que les codeurs de charges Q-ADC1 et Q-ADC2 soient alimentés au bon instant en fonction des portes temporelles de déclenchement. Ce retard est de l'ordre de quelques dizaines de ns. Les portes d'autorisation de codage sont générées par un générateur de porte déclenché par un discriminateur à fraction constante. En effet, le signal de dynode une fois inversé et mis en forme par un amplificateur temporel rapide ou FTA ("Fast Timing Amplifier") alimente l'entrée du discriminateur à fraction constante ou CFD ("Constant Fraction Discriminator"). Ce tiroir permet de déclencher la génération des portes autorisant le codage toujours au même moment de l'impulsion, quel qu'en soit l'amplitude.

8.4. MÉTHODE NUMÉRIQUE : LA COMPARAISON DE CHARGES

Les codeurs de charges utilisés sont les codeurs V465 et V792 de la société CAEN. Leur plage de mesure s'étend de 0 à 400 pC pour le V465 et de 0 à 1600 pC pour le V792. Le temps mort de codage est de 5 μ s fixe pour le V792 et de 13 μ s dans le cas le plus défavorable pour le V465. Ces codeurs fonctionnent sur le bus VME, ce qui a permis de développer des programmes d'acquisition de données mis en oeuvre sur le PC contrôleur du bus VME.

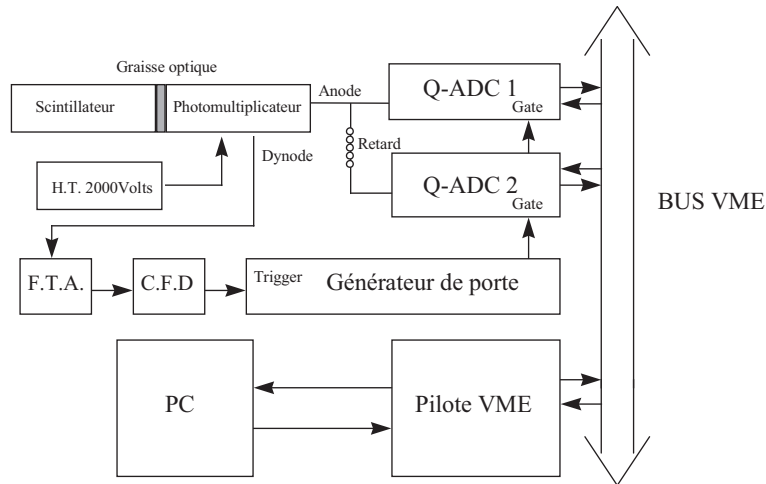


FIG. 8.10: Schéma du dispositif expérimental mis en oeuvre pour la méthode de discrimination de particules dite par comparaison de charges.

Les synoptiques de fonctionnement des programmes d'acquisition sont présentés figures 8.11 et 8.12. Bien que de structures similaires, il a fallu développer deux types de programme afin de prendre en compte des différences notables de fonctionnement des deux codeurs. La différence concerne en particulier la gestion du buffer dans lequel les données numérisées sont stockées par les cartes d'acquisition avant leur envoi sur le bus VME en vue d'un stockage sur le disque dur du PC contrôleur.

La carte V465 génère, à chaque acquisition, un entête (ou "header") dans le buffer qui contient le nombre de canaux convertis pour un top horloge (le top horloge est déclenché par le générateur de porte). Puis suivent l'ensemble des canaux convertis correspondant à ce top horloge. Le choix de démarrer la lecture des données lorsque la FIFO (First In First Out) est à moitié pleine permet d'éviter de perdre des informations lorsque la FIFO est pleine. Le dispositif d'acquisition - stockage des données pourrait se trouver indisponible durant la lecture de la FIFO de la carte d'acquisition par le bus VME, ce qui entraînerait la perte des impulsions arrivant à ce moment là au niveau du codeur. Le programme d'acquisition boucle sur lui-même dès que la FIFO est à nouveau à demi-remplie, comme cela est présenté sur la figure 8.11.

La carte V792 gère différemment les données. La lecture des données est lancée une fois que la FIFO est à moitié pleine pour la même raison que celle décrite dans le paragraphe

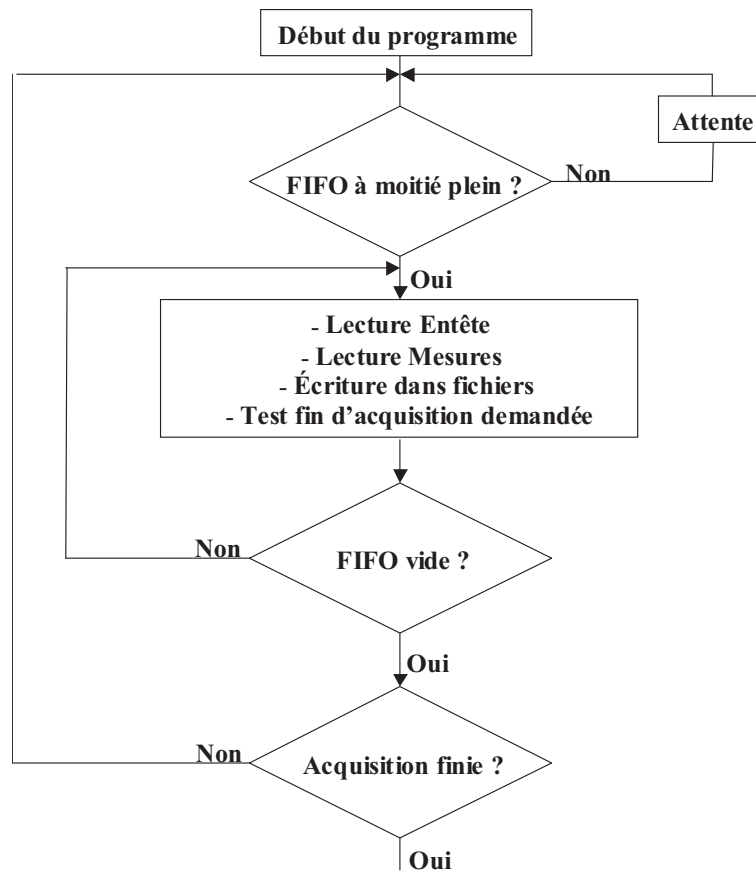


FIG. 8.11: Synoptique du programme d'acquisition utilisant le module V465

précédent. Les mesures sont toutes séparées les unes des autres par un entête qui est, ici, inclus dans les données lues par le bus VME. L'opération de lecture se répète jusqu'à ce qu'un mot particulier soit rencontré dans la FIFO, à savoir le mot "Fin de Bloc" qui signifie que l'ensemble des événements correspondant à un top horloge donné, déclenché par le générateur de porte, ont été lus et qu'il faut passer au top horloge suivant en rebouclant le programme de lecture du buffer comme le montre la figure 8.12.

La distribution temporelle des signaux choisie pour les acquisitions est présentée sur la figure 8.13. La porte retardée permet de ne considérer que la queue de l'impulsion. La largeur totale des portes doit être au moins égale à 50 ns à cause des limitations internes liées aux convertisseurs charges - tension des codeurs. Les paramètres temporels doivent être réglés à nouveau à chaque expérience afin d'ajuster d'éventuelles modifications de longueur de câbles ayant pu intervenir. Par exemple, un mètre de câble coaxial engendre un retard typique de 5 ns. Or les signaux ont des largeurs à mi-hauteur de l'ordre de la dizaine de ns. La qualité de la discrimination dépend de la synchronisation entre l'ensemble des signaux (physiques et temporels pour le codage). La largeur des portes a une influence importante sur la qualité de la discrimination et sur la limite basse en énergie à partir de

8.4. MÉTHODE NUMÉRIQUE : LA COMPARAISON DE CHARGES

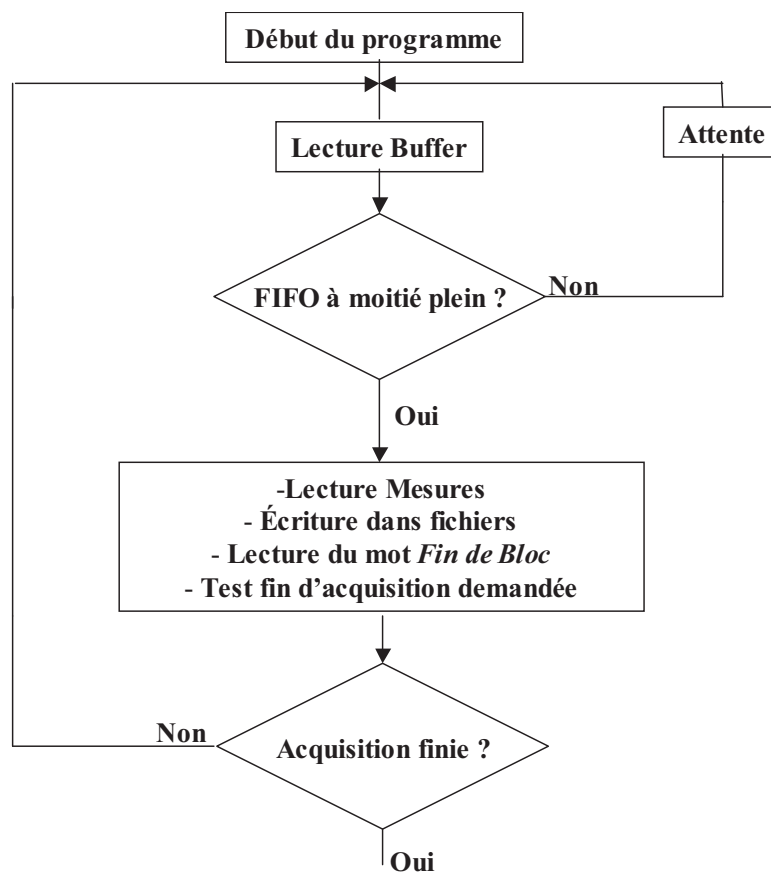


FIG. 8.12: Synoptique du programme d'acquisition utilisant le module V792

laquelle les différentes familles de particules sont séparées les unes des autres [Heltsley 88].

L'ensemble des données stockées dans les fichiers doit être retraité par un logiciel d'analyse des données du type PAW³. Ce type de logiciel permet d'extraire les résultats intéressants et de juger de l'efficacité avec laquelle la discrimination de particules a été réalisée. Ce résultat varie notablement en fonction du choix de la répartition temporelle des signaux.

8.4.2 Montage mixte analogique et numérique

Une mise en oeuvre originale a été mise au point par Toke [Toke 93] avec un dispositif électronique analogique simple qui permet de réaliser la conversion impulsion - charge avec un minimum de composants. L'intérêt d'un tel montage est de s'affranchir des problèmes de synchronisation des portes lentes et rapides pour le codage de la charge totale et retardée du signal. Cet atout n'est pas négligeable compte tenu de la sensibilité avec

³Physic Analysis Workstation du Centre Européen pour la Recherche Nucléaire

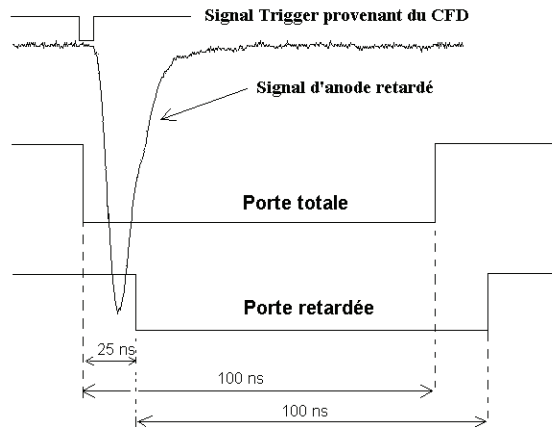


FIG. 8.13: Répartition temporelle des signaux pour la discrimination neutron - gamma par la méthode de la comparaison de charges.

laquelle la qualité de discrimination varie en fonction de la partie de la charge lente codée. Seule la partie analogique du dispositif présenté sur la figure 8.10 est modifiée par le montage présenté sur la figure 8.14.

Le premier étage du montage se charge d'inverser le signal de la dernière dynode connectée à l'entrée du montage. C'est ce qui donne la sortie Q totale indiquant ainsi que cette sortie contient l'ensemble de la charge de l'impulsion.

Le second étage a pour fonction de différencier le signal avec une constante de temps égale à 27 ns. Cette constante se règle par le jeu du couple de résistances entourant le transistor PNP. Les transistors utilisés sont des transistors rapides issus du domaine de l'électronique des Hyper Fréquences. Le transistor PNP est polarisé par l'intermédiaire d'un potentiomètre de 10 k Ω afin de rejeter la majorité de la partie positive du signal différencié, de façon à ne récupérer que la partie négative du signal différencié sur la sortie Q retardée.

8.4.3 Résultats

L'utilisation habituelle de cette méthode de discrimination consiste à tracer la charge retardée par rapport à la charge totale (Cf. figure 8.15). Mais certains auteurs comme [Aleksan 88] préfèrent effectuer un ratio entre la charge retardée et la charge totale et ensuite réaliser un tracé d'histogrammes. Il apparaît alors autant de gaussiennes qu'il y a de familles de particules qui ont interagi à condition que la discrimination de particules s'effectue aisément dans le scintillateur étudié. Avec les scintillateurs testés cet artifice mathématique n'améliore pas la séparation entre les pics.

En théorie, aucune mesure ne doit se trouver au dessus de la première bissectrice. En effet, la charge contenue dans la partie remontante du signal est toujours inférieure à celle

8.4. MÉTHODE NUMÉRIQUE : LA COMPARAISON DE CHARGES

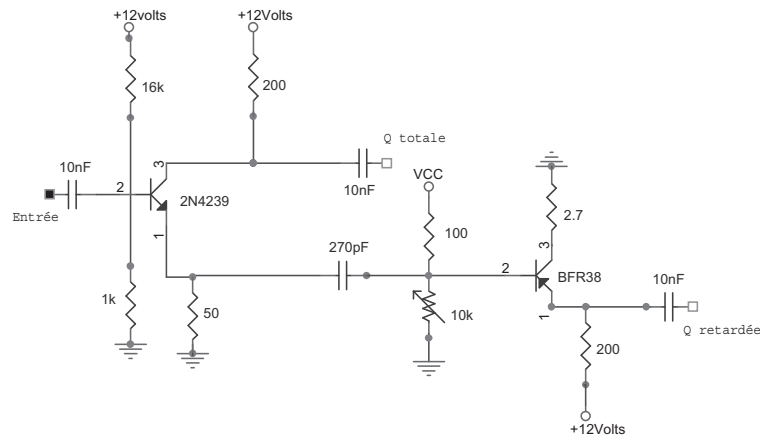


FIG. 8.14: Montage permettant d'améliorer les performances de discrimination neutron - gamma de la méthode de la comparaison de charges.

présente dans le signal global. Cependant, pour améliorer les performances, il est courant de diminuer le signal correspondant à la charge totale à l'aide d'un atténuateur afin que le maximum de la charge corresponde au maximum de la plage de codage autorisée par le codeur. Il est alors possible que certains points se situent au dessus de la première bissectrice.

En outre, certaines impulsions peuvent générer des charges dont la valeur se situe au dessus de cette première bissectrice dans certains cas d'empilement. Ce problème est révélateur d'un défaut de réglage des seuils du discriminateur à fraction constante.

Avec une source alpha d'Américium 241

Afin de tester le fonctionnement de cette méthode de discrimination de particules, une expérience a été réalisée en utilisant une source d'Américium 241. La source alpha est placée sous un vide primaire en vis à vis avec la face d'entrée du scintillateur dont la surface est également connectée au vide primaire. Ainsi, l'énergie des alpha n'est que très peu atténuée durant leur parcours entre la source et la surface du scintillateur.

La séparation des deux lobes (alpha et gamma) s'effectue relativement bien comme le montre la figure 8.15. Néanmoins, il faut noter que l'énergie des alpha est d'environ 5,45 MeV et que celle des gamma est relativement faible, puisqu'elle est inférieure à 100 keV. Ces résultats de discrimination permettent de conclure quant à la capacité des scintillateurs plastiques à réaliser une discrimination entre les alpha et les gamma de faibles énergies et quant à la fiabilité du montage réalisé. Ce type d'expériences permet également d'optimiser le réglage des portes temporelles afin de réaliser la meilleure séparation possible des lobes lorsque le scintillateur est placé sous flux mixte neutronique et gamma.

Dans le cas où le vide est remplacé par l'air, seuls les gamma peuvent interagir avec le scintillateur. Comme le montre la figure 8.16, il apparaît un seul lobe qui correspond

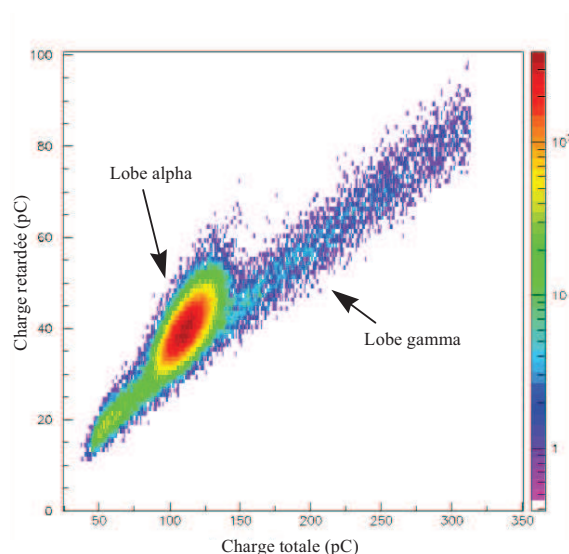


FIG. 8.15: Discrimination par la méthode de la comparaison de charges mise en oeuvre avec un scintillateur plastique dopé au Bore soumis à un flux mixte alpha et gamma provenant d'une source d'Américium 241.

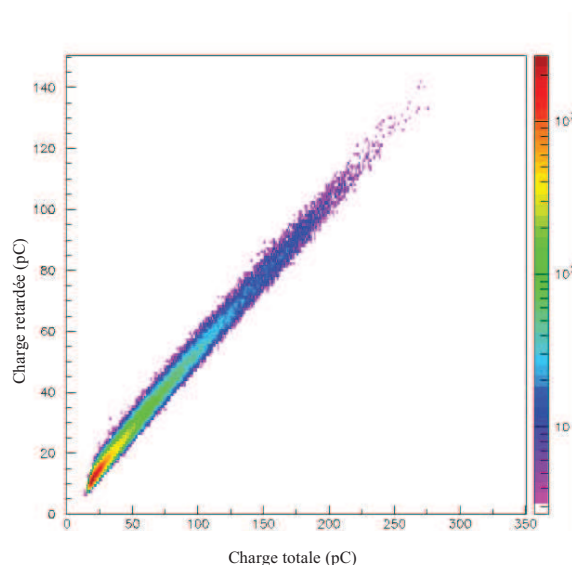


FIG. 8.16: Scintillateur plastique dopé au Bore sous rayonnement gamma seul. Méthode de discrimination par comparaison de charges.

uniquement aux interactions (essentiellement par effet Compton) entre les gamma et le scintillateur.

Ainsi, la méthode de discrimination de particules par la méthode de la comparaison de charges fonctionne bien pour des particules ayant un fort pouvoir ionisant comme

8.4. MÉTHODE NUMÉRIQUE : LA COMPARAISON DE CHARGES

les alpha de 5,45 MeV. En effet, la charge contenue dans la queue de l'impulsion, que ces particules engendrent, est suffisamment importante pour être distinguée de celle provenant de l'interaction d'un gamma avec le scintillateur.

Avec une cellule du détecteur DEMON

Afin de vérifier la mise en oeuvre de la chaîne électronique pour la discrimination entre les neutrons rapides et le rayonnement gamma, un test a été réalisé avec une cellule du détecteur DEMON (DEtecteur MOdulaire de Neutron) [Tilquin 95]. Le dispositif électronique expérimental est identique à celui utilisé précédemment pour la source d'Américium 241. Seule la synchronisation des signaux a dû être de nouveau ajustée.

Ce détecteur utilise un scintillateur organique liquide de type NE213 qui a de très bonnes propriétés de discrimination de particules. Le flux de particules utilisé pour cette expérience est un flux mixte gamma et neutron provenant d'une source d'AmBe non thermalisée émettant 218 000 neutrons par seconde et dans les 4π d'angle solide total.

La séparation des deux groupes de signaux apparaît très nettement sur la figure 8.17 où le lobe neutron et le lobe gamma ne se confondent que pour les charges de faibles valeurs. Les points, situés au dessus de la famille correspondante aux neutrons rapides, proviennent soit de particules du rayonnement cosmique car elles sont plus fortement ionisantes et induisent alors une charge retardée plus importante que pour les neutrons rapides. Ils peuvent être également liés à un empilement dû à une saturation de l'électronique d'acquisition. Cet empilement correspond à une activité combinée neutron et gamma de la source AmBe trop importante au regard de la vitesse de traitement de l'information par les codeurs de charge utilisés.

Cette expérience a permis de vérifier que l'ensemble de la chaîne électronique fonctionnait correctement et était en mesure de séparer les neutrons du rayonnement gamma par cette méthode de discrimination consistant à comparer la charge totale contenue dans le signal et celle comprise dans la queue de l'impulsion.

A la vue de ces résultats, il apparaît nettement que la qualité de cette méthode dépend des propriétés de discrimination intrinsèques au scintillateur employé. De même, les propriétés de discrimination de particules des scintillateurs organiques liquides apparaissent nettement supérieures à celles des scintillateurs organiques solides, comme le présente le paragraphe suivant.

Avec un scintillateur plastique dopé au Bore

Lorsque cette méthode est appliquée à un scintillateur plastique dopé au Bore, il n'apparaît que deux lobes sur le spectre présenté sur la figure 8.18. Le scintillateur testé est un scintillateur plastique dopé au Bore sous un flux gamma et neutron provenant

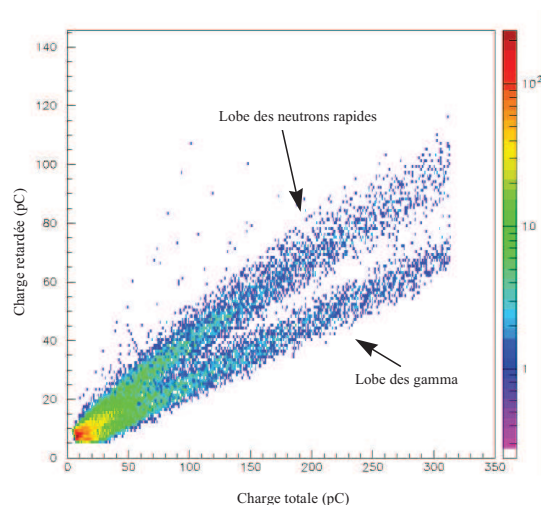


FIG. 8.17: Discrimination neutrons rapides et gamma à l'aide d'une cellule de détection DEMON contenant un scintillateur liquide, le NE213.

d'une source constituée de trois chambres à fission recouverte d'un dépôt représentant un total de 3 g d'Uranium 235. Le lobe inférieur correspond aux gamma et le lobe supérieur aux neutrons rapides. Sur cette expérience il n'a pas été possible de visualiser le lobe correspondant aux neutrons thermiques.

Les ions alpha et Lithium générés durant la capture du neutron thermique par le noyau de Bore 10 se partagent une énergie correspondant au Q de la réaction, à savoir, au minimum 2,3 MeV. Moyennant un réglage précis de la synchronisation des portes temporelles d'intégration, il est possible de distinguer les neutrons thermiques du rayonnement gamma après un traitement des données sous PAW. Le scintillateur testé est toujours un scintillateur plastique dopé au Bore soumis à un flux gamma mélangé ou non avec un flux de neutrons thermiques provenant d'une source d'AmBe thermalisée.

Comme le montre la figure 8.19, la partie du spectre correspondant aux neutrons thermiques se situe dans un lobe en bas de spectre. Le lobe gamma, situé au dessous du lobe correspondant aux neutrons thermiques, domine la première bissectrice de toutes ces figures. La proximité du lobe correspondant aux neutrons thermiques avec le début du spectre entraîne des problèmes de séparations des signaux. Dans le cas d'un scintillateur plastique non dopé, il n'apparaît qu'un seul lobe qui correspond aux gamma, comme le montre la figure 8.20.

Résultat avec le montage mixte analogique - numérique

L'oscillogramme 8.21 présente les signaux observables en utilisant ce montage mixte. Le canal 3 représente la porte temporelle utilisant le codage. Le signal présent sur le canal 1 correspond à la charge totale. Le canal 2 correspond à la partie retardée de la charge, c'est à dire la partie du signal qui a été différenciée par le montage électronique. Ces deux

8.4. MÉTHODE NUMÉRIQUE : LA COMPARAISON DE CHARGES

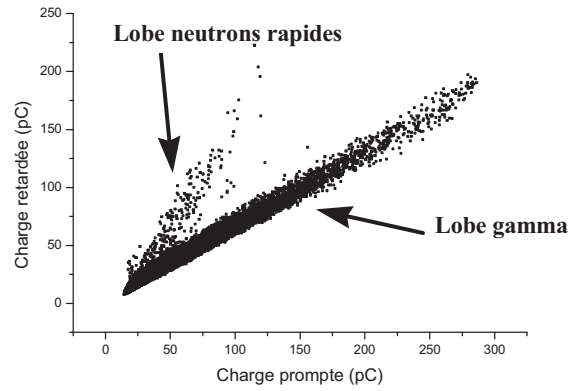


FIG. 8.18: Scintillateur plastique dopé au Bore sous flux mixte neutrons rapides et gamma.

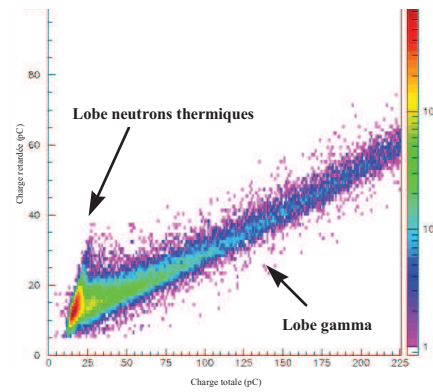


FIG. 8.19: Scintillateur plastique dopé au Bore sous flux mixte de neutrons thermiques et de rayonnement gamma.

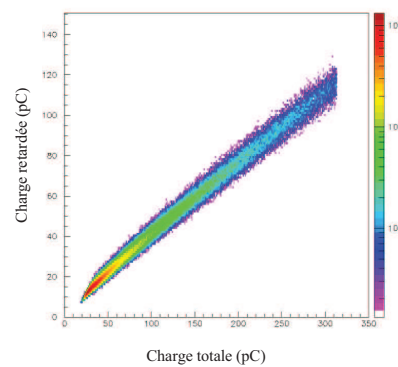


FIG. 8.20: Cas d'un scintillateur non dopé soumis à un flux mixte de neutrons thermiques et gamma.

derniers signaux doivent être impérativement compris au sein de la porte temporelle d'autorisation du codage. Le signal différencié, malgré la polarisation appliquée au transistor NPN présente un léger "overshoot" qui n'est pas numérisé car il se situe en dehors de la porte temporelle autorisant le codage.

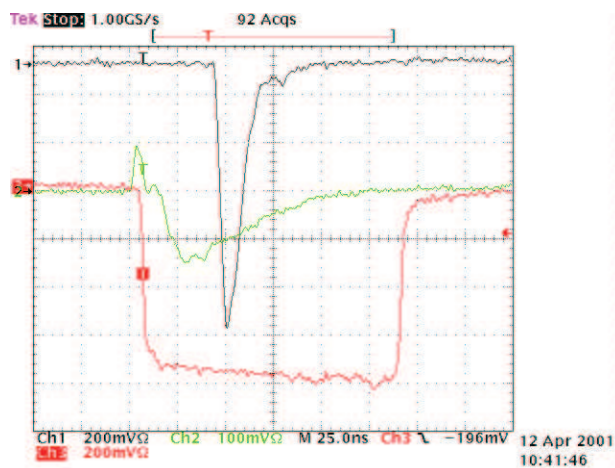


FIG. 8.21: Oscillogramme des signaux provenant du dispositif électronique décrit précédemment. Le canal 1 correspond à la voie "charge totale", le canal 2 à la voie "charge retardée" et le canal 3 représente la porte autorisant le codage des convertisseurs.

Le spectre qui est présenté sur la figure 8.22 correspond à une source de Césium 137 seule. Ce spectre bidimensionnel en charge ne dispose que du lobe gamma situé autour de la première bissectrice. En présence d'une source alpha d'Américium 241, la séparation entre le lobe correspondant aux alpha et celui correspondant aux gamma s'effectue aisément, comme le montre la figure 8.23.

Si la source alpha est placée à proximité du détecteur en présence d'une source de neutrons, un lobe supplémentaire apparaît au faible canaux sur la figure 8.24. Ce lobe, relativement bien localisé, correspond aux neutrons thermiques qui ont interagi avec le scintillateur. Le lobe correspondant aux alpha de l'Américium peut toujours être observé sur cette même figure 8.24 aux mêmes canaux que ceux présentés sur la figure 8.23. Le montage électronique doit être amélioré notamment en ce qui concerne son immunité vis à vis du bruit et des performances en terme de séparation de signal.

8.4.4 Performances de la méthode de discrimination

Les limites de flux de particules dépendent de la capacité des codeurs à suivre le flux d'information. Sur une base d'un temps de codage moyen de $10 \mu s$ par évènement, la limite de flux se situe à 100 kHz. De plus, cette méthode de discrimination nécessite un traitement hors-ligne des informations pour les rendre exploitables, notamment en ce qui concerne la bonne séparation des neutrons thermiques du rayonnement gamma.

8.4. MÉTHODE NUMÉRIQUE : LA COMPARAISON DE CHARGES

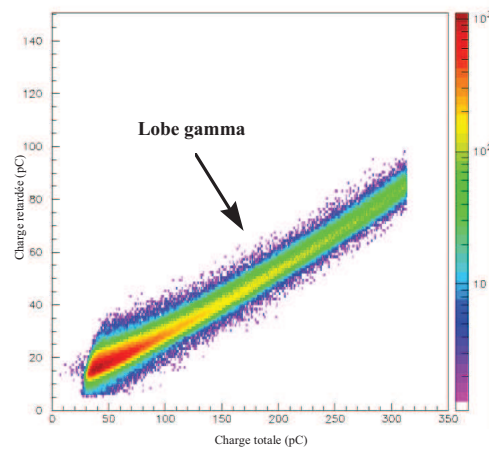


FIG. 8.22: Scintillateur plastique dopé au Bore sous rayonnement gamma seul. Mise en oeuvre utilisant le montage mixte analogique et numérique.

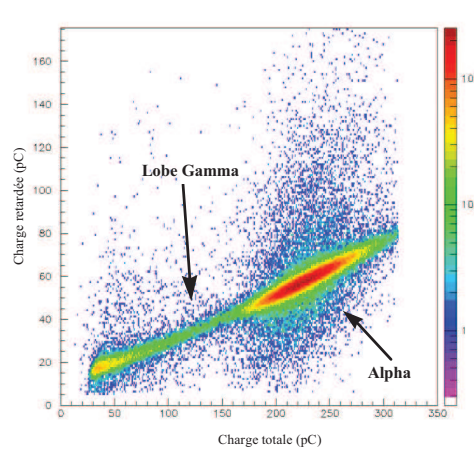


FIG. 8.23: Scintillateur plastique dopé au Bore sous rayonnement alpha et gamma d'une source d'Américium 241.

Les sources neutroniques utilisées conduisent à des débits de dose neutronique et gamma qui sont consignée dans le tableau 8.2.

	^{258}Cf	AmBe
Neutron	$58 \pm 5 \mu\text{Sv.h}^{-1}$	$34 \pm 5 \mu\text{Sv.h}^{-1}$
Gamma	$38 \mu\text{Sv.h}^{-1}$	$80 \mu\text{Sv.h}^{-1}$

Tableau 8.2: Débits de dose neutroniques et gamma des sources utilisées

A la lumière de ces activités et des performances, tant de la méthode analogique que de la méthode numérique, il apparaît difficile d'utiliser ces détecteurs avec des niveaux radiologiques importants. En effet, la discrimination de particules ne permet pas d'accepter

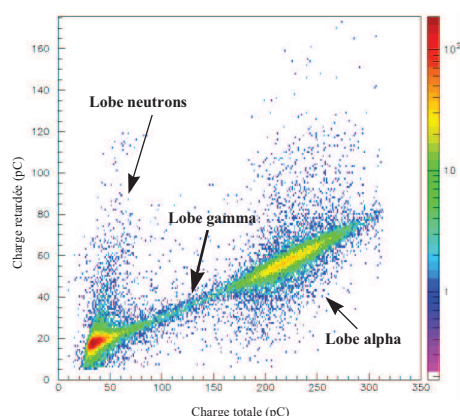


FIG. 8.24: Scintillateur plastique dopé au Bore sous un flux mixte de neutrons, d'alpha et de gamma. Discrimination neutron - alpha et gamma.

des niveaux radiologiques élevés à cause du traitement de l'information nécessaire.

8.4.5 Conclusions

En définitive, la méthode numérique fonctionne avec les scintillateurs plastiques dopés au Bore si l'énergie des particules à détecter (par exemples, particules alpha de 5,4 MeV) est suffisante pour induire une charge mesurable et séparable du bruit de fond gamma. En présence d'un flux mixte gamma et neutronique, cette méthode ne permet pas de distinguer aisément les neutrons thermiques des deux autres familles de particules (gamma et neutrons rapides). De plus, cette méthode impose la réalisation d'un traitement des données particulier et donc d'une analyse hors ligne, ce qui la rend difficilement utilisable sur une ligne industrielle de mesure.

La discrimination entre les neutrons et les gamma est difficile intrinsèquement pour les scintillateurs plastiques dopés au Bore. Néanmoins, la méthode analogique dite du passage par zéro permet de séparer de façon satisfaisante les neutrons rapides, des gamma et des neutrons thermiques. La méthode numérique permet de séparer relativement facilement les neutrons rapides du rayonnement gamma et de façon beaucoup moins évidente les neutrons thermiques du rayonnement gamma. Des expériences complémentaires doivent avoir lieu en ce sens afin d'améliorer les limites de détection et de tester les capacités de discrimination des scintillateurs plastiques dopés au Bore lorsqu'ils sont soumis à des faisceaux de neutrons rapides de fortes énergies (par exemple auprès d'un accélérateur permettant d'obtenir des neutrons de 14 MeV).

Par ailleurs, les neutrons thermiques peuvent être aisément séparés des autres particules par une analyse en amplitude (Cf. chapitre 6). L'énergie libérée par la réaction de capture est toujours la même, ainsi la rémanence de ce signal lui permet, malgré sa faible amplitude, d'être extrait du bruit de fond gamma.

Chapitre 9

Applications

Compte tenu de leurs performances pour la détection de neutrons thermiques, les scintillateurs plastiques dopés au Bore peuvent être utilisés dans des dispositifs nécessitant une forte efficacité de détection neutronique. A cause de leur sensibilité vis à vis du rayonnement gamma, ces scintillateurs dopés sont cantonnés aux applications dans lesquelles l'intensité du rayonnement parasite permet encore de réaliser une discrimination de particules. Dans ce chapitre, différentes applications possibles sont présentées.

9.1 Mesure des émetteurs neutrons dans les fûts de déchets.

9.1.1 Généralités sur les multiplicités neutroniques

Lors des mesures dans les ateliers traitant les déchets à la COGEMA, l'exploitant doit être en mesure de donner la quantité d'actinides résiduelle présente dans les fûts qu'il a, soit traités, soit générés. Tous les neutrons détectés en provenance du fût de déchets ne sont pas issus de fissions spontanées. Ils ne sont donc pas tous caractéristiques des actinides résiduels présents. En effet, les actinides sont tous émetteurs alpha. Or les fûts de déchets contiennent fréquemment des composés de Z peu élevé. Ce sont typiquement des matériaux provenant des filtres en cellulose ou des bâches en vinyle utilisés pour l'exploitation ou la maintenance de l'usine. Dès lors, des réactions (α, n) peuvent se produire comme celles présentées sur les tableaux situés en annexe A. A chacune de ces réactions, seul un neutron est émis. Les neutrons émis lors de ces réactions nucléaires sont tous décorrélés temporellement les uns par rapport aux autres.

Chaque fission spontanée libère plus d'un neutron. Le nombre de neutrons émis lors d'une réaction de fission induite ou spontanée correspond à la multiplicité de l'émission neutronique. Or, chaque isotope émet un nombre de neutrons qui lui est propre comme le montre la figure 9.2. Cette information, une fois traitée permet donc de remonter à la masse d'isotope fissile présente dans le fût de déchets. En effet, à chaque nombre de neutrons émis simultanément est associée une certaine probabilité comme montré sur les

tableaux situés en annexe A. Certains paramètres, notamment concernant le mélange de forte masse d'actinides, peuvent induire une augmentation et une diminution des multiplicités et de leurs probabilités associées.

La caractéristique recherchée à l'aide de cette technique de mesure est le nombre de neutrons coïncidents réellement émis, c'est à dire le nombre de doublets, de triplets, de quadruplets, etc, qu'il est possible de constituer avec 2, 3, 4 neutrons ou plus détectés [Pickrell 97]. A titre d'exemple, les équations **9.1**, **9.2** et **9.3** donnent respectivement le nombre de singulet (S), de doublet (D) et de triplet (T) en fonction de différents paramètres expérimentaux et physiques de la source neutronique analysée.

$$S = F\varepsilon M\nu_{S_1}(1 + \alpha) \quad (9.1)$$

$$D = \frac{F\varepsilon^2 f_d M^2}{2} \cdot \left(\nu_{S_2} + \left(\frac{M-1}{\nu_{i1}-1} \right) \cdot \nu_{S_1} \cdot (1 + \alpha) \cdot \nu_{i2} \right) \quad (9.2)$$

$$T = \frac{F\varepsilon^3 f_t M^3}{6} \left(\nu_{S_3} + \left(\frac{M-1}{\nu_{i1}-1} \right) [3\nu_{S_2}\nu_{i2} + \nu_{S_1}(1 + \alpha)\nu_{i3}] + 3 \left(\frac{M-1}{\nu_{i1}-1} \right)^2 \nu_{S_1}(1 + \alpha)\nu_{i2}^2 \right) \quad (9.3)$$

Où les paramètres sont :

- F est le taux de fission simple,
- ε est l'efficacité du détecteur,
- f_d est la fraction temporelle de la double porte coïncidente,
- f_t est la fraction temporelle de la triple porte coïncidente,
- M est le taux de perte de l'échantillon dû à l'automultiplication,
- α est le ratio entre les réactions (α, n) et les fissions spontanées,
- ν_{S_i} est le i -ème moment des fissions spontanées,
- ν_{in} est le n -ème moment des fissions induites.

Les incertitudes se rapportant à la mesure des multiplicités neutroniques implique la connaissance des incertitudes concernant la masse finale estimée d'équivalent Plutonium [Haas 98].

L'utilisation de scintillateurs plastiques dopés au Bore induit une efficacité de détection qui est améliorée d'un facteur 2,6. Or la mesure de multiplicités (n) varie comme la puissance n -ième de l'efficacité, donc la mesure globale de multiplicité est améliorée d'un facteur supérieur à 6,76 pour une mesure de doublet. Parallèlement, la durée de vie du neutron est diminuée dans la cellule de mesure par l'emploi de ce type de scintillateur. Or ce paramètre influe sur la mesure finale des multiplicités puisqu'il impose la largeur des portes de coïncidence temporelles à utiliser. La figure **9.1** présente l'évolution du comptage net des multiplicités en fonction de la variation de la durée de vie du neutron. Plus la

9.1. MESURE DES ÉMETTEURS NEUTRONS DANS LES FûTS DE DÉCHETS.

durée de vie du neutron est faible plus le maximum de la fonction représentant le comptage net des multiplicités est atteint pour des pré-retard et des temps de coïncidence faibles. Ainsi l'utilisation des scintillateurs plastiques dopés au Bore est susceptible d'améliorer les performances des dispositifs de mesure de multiplicités neutroniques.

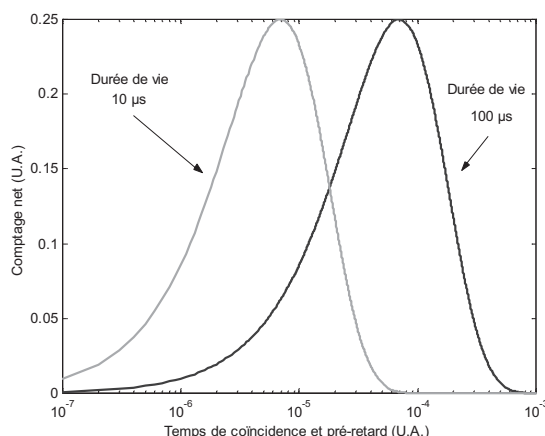


FIG. 9.1: Evolution de la mesure de multiplicités en fonction de la durée de vie du neutron dans la cellule de mesure. La valeur 100 μ s représente les dispositifs à base d'Hélium 3 et la valeur 10 μ s représente les dispositifs utilisant des scintillateurs plastiques dopés au Bore.

Le paragraphe suivant présente plusieurs algorithmes de calcul qui permettent, à partir de la mesure des multiplicités neutroniques, de déduire la masse d'actinides présente dans l'échantillon analysé.

9.1.2 Algorithmes disponibles

A l'aide d'algorithmes de type RDMN ou TCA, il est possible de déterminer un nombre de neutrons totaux, coïncidents ou réels émis par seconde qui sont représentatifs de la masse en isotopes pairs du Plutonium. Ce type d'algorithme donne des résultats exploitables avec des cellules de mesures disposant d'une efficacité totale de détection d'au moins 10 % [Laisne 99].

L'algorithme RDMN

L'algorithme RDMN utilise la théorie de Bohnel. Il fournit les multiplicités réelles qui représentent le nombre de fissions spontanées ayant généré i neutrons. Il est basé sur une mesure des multiplicités (réelles + accidentelles) et (accidentelles). Le système de comptage réalise la datation neutronique en utilisant des registres à décalage. Le taux de comptage maximal admissible est alors de 300 000 impulsions par seconde [Laisne 99].

- Sur une première voie (dite de coïncidences réelles plus accidentelles), chaque impulsion est mise en coïncidence avec les autres, pendant le temps de coïncidence

τ_i choisi sur deux voies de comptage différentes. Trois paramètres définissent ce fonctionnement : la fréquence du registre (i.e. fréquence d'ouverture des fenêtres temporelles), la durée de chaque fenêtre et la durée séparant deux ouvertures de fenêtres temporelles pour la mesure des impulsions accidentelles.

- Sur une seconde voie (dite de coïncidences accidentelles), chaque impulsion est mise en coïncidence avec les impulsions qui apparaissent après un long retard. Ce retard vaut typiquement de l'ordre de la milliseconde.

La différence de comptage entre ces deux voies est proportionnelle au nombre de paires de neutrons issues des fissions spontanées.

L'algorithme TCA

L'algorithme TCA utilise la théorie de Jacquesson. Il consiste à ouvrir une série de fenêtres de durées définies à chaque impulsion neutronique. Cette méthode est utilisée principalement pour les faibles taux de comptage (inférieurs à 5000 coups par seconde). Dans toutes les fenêtres, les neutrons sont comptés pendant un temps fixé de façon à ce que :

- Sur une première voie, toutes les impulsions soient enregistrées. Cette voie de mesure correspond à un temps mort négligeable.
- Sur une deuxième voie, le temps mort est paramétrable et de l'ordre de grandeur de la durée de vie du neutron dans la cellule de mesure. Les neutrons décorrélés avec un neutron détecté (cas de la fission spontanée) ne sont donc pas enregistrés.

La différence de comptage entre les deux voies est donc représentative du nombre de fissions spontanées.

Il est également possible de mettre en oeuvre des échelles de multiplicités qui permettent d'enregistrer avec un registre à décalage des histogrammes représentant le nombre de fois où ont été détectés 0, 1, 2, 3, etc. neutrons en coïncidence sur un intervalle de temps fixé. A l'issu du comptage, il est alors possible d'extraire une grandeur proportionnelle à la quantité d'émetteurs neutroniques indépendante des taux d'émission (α, n) et des éventuels effets multiplicatifs dus à la masse. Pour cette méthode, il est souhaitable de disposer d'une cellule de mesure avec une efficacité de détection supérieure à 15 %.

9.1.3 Méthode de mesure

L'efficacité de détection de la cellule, ainsi que les éventuels effets de matrices et de multiplication en cas de forte masse de Plutonium doivent également être pris en compte. En effet, le calcul de la masse de Plutonium 240 équivalente doit tenir compte des effets multiplicatifs dus à la mesure de fortes quantités de Plutonium. Cet effet provient des fissions induites sur des noyaux fissiles par les neutrons provenant de fissions spontanées. Le nombre total de neutrons émis (neutrons provenant des fissions spontanées et neutrons provenant des fissions induites) se trouve alors d'autant plus important que la densité de

9.1. MESURE DES ÉMETTEURS NEUTRONS DANS LES FÛTS DE DÉCHETS.

noyaux fissiles est importante. Cet effet est donc qualifié d'effet multiplicatif lié à la masse. finalement, il existe alors trois origines possible pour les neutrons émis. Ils proviennent soit des fissions spontanées, soit des fissions induites ou soit des réactions (α, n) . L'information provenant des fissions spontanées est la plus importantes et dans une moindre mesure celle provenant des fissions induites. Par contre, les neutrons issus de réaction (α, n) ne renseignent pas sur la quantité d'actinides présente dans le fût de déchets étudié.

De part le principe de fonctionnement de ces méthodes de mesure, la durée de vie du neutron dans l'ensemble de détection est très important et représente un paramètre sensible de ce type de mesure. En effet, les largeurs des portes temporelles utilisées pour la mise en coïncidence des événements neutroniques dépendent directement du temps que met un neutron à être détecté par une réaction de capture, après avoir pénétré le dispositif de détection.

La composition isotopique du Plutonium présent dans le fût de déchets joue un rôle très important pour la détermination précise de la quantité de matière résiduelle présente. Dans la plupart des cas, une spectroscopie gamma du fût est réalisée préalablement à la mesure neutronique. Comme les raies gamma sont caractéristiques des radioéléments présents et que leurs intensités sont également une fonction de la quantité présente, il est possible de déterminer la composition isotopique, par exemple du Plutonium constituant le déchet analysé.

Des logiciels comme MGA ou IGP permettent de déconvoluer les spectres et d'obtenir la composition isotopique du Plutonium (pour le logiciel MGA) ou de l'Uranium (pour le logiciel IGP) à partir d'un spectre gamma.

Une autre approche consiste à utiliser des codes de calcul basés sur l'expérience. Elle consiste à tenir compte de l'histoire vécue par le combustible (temps de présence dans le coeur du réacteur, taux combustion, etc.) et de remonter ainsi, par calcul, à l'activité selon les isotopes présents.

L'ensemble de la procédure de mesure des colis de déchets par comptage neutronique passif est décrit dans la norme AFNOR¹ NF M 60-306. Cette norme reprend l'ensemble des techniques de mesure utilisables, les limites de détections, la méthode à appliquer, ainsi que les paramètres critiques des méthodes.

9.1.4 Principe de mise en oeuvre du dispositif de détection

Une réalisation d'un dispositif possible mettrait en oeuvre l'électronique décrite dans ce paragraphe.

La mesure des multiplicités neutroniques implique une efficacité de détection qui doit être la plus importante possible. Le détecteur doit donc disposer d'une très bonne sensibilité aux neutrons et d'une géométrie permettant de couvrir au mieux les 4π d'angle

¹ Agence Française de NORmalisation

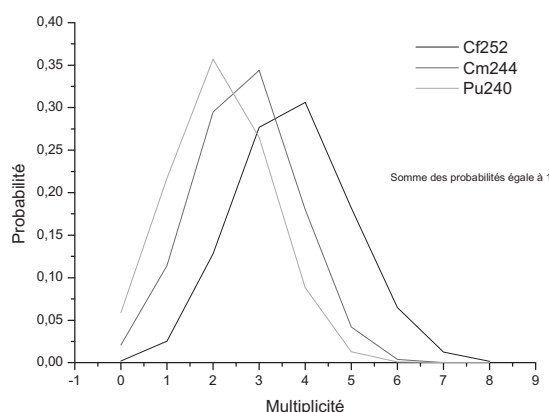


FIG. 9.2: Evolution des multiplicités neutroniques en fonction du radioélément.

solide. Un problème consiste en la fabrication et la mise en oeuvre de scintillateurs dopés de grandes dimensions.

Le dispositif préliminaire est constitué de deux scintillateurs installés en vis à vis comme décrit sur la figure 9.3. Un photomultiplicateur est installé aux deux extrémités des scintillateurs. Ce montage permet de collecter tous les photons de scintillation émis qui n'ont pas été auto-absorbés par le scintillateur. La somme des deux signaux permet donc de connaître la quantité de photons de scintillation émis alors que la différence permet de connaître le lieu d'émission de ces mêmes photons. En combinant ces deux informations, il est possible de connaître le nombre total réel de photons émis en tenant compte du chemin optique suivi par les deux groupes de photons. La connexion optique entre le scintillateur et les photomultiplicateurs est assurée par un guide de lumière à base d'Altuglass.

Compte tenu de ses performances de discrimination neutron gamma, le module N715 a été choisi afin de réaliser la séparation entre les signaux provenant des gamma et celui provenant des neutrons comme le montre la figure 9.4. Chaque module N715 est prévu pour fonctionner avec deux photomultiplicateurs. La sortie de chacun de ces modules valide les événements vus comme étant des événements neutrons. Elle est connectée à une entrée de la carte AMN 10 (Eurisys Mesures) qui réalise alors la datation des neutrons et l'analyse des multiplicités des neutrons détectés.

Cette carte est couplée à un logiciel INTERWINNER NEUTRON qui permet de déduire compte tenu de l'efficacité du détecteur, des paramètres concernant la composition isotopique du colis et de la géométrie de l'échantillon la quantité d'actinides présente dans l'échantillon analysé.

La principale difficulté réside dans la séparation du signal provenant des neutrons thermiques de celui provenant du bruit de fond gamma environnant. Cette opération est réalisée grâce aux modules N715.

Le dispositif utilise des scintillateurs dont la longueur est de 25 cm. Ainsi, les photons générés par les événements de capture n'ont pas un trajet lumineux très long à parcourir

9.1. MESURE DES ÉMETTEURS NEUTRONS DANS LES FûTS DE DÉCHETS.

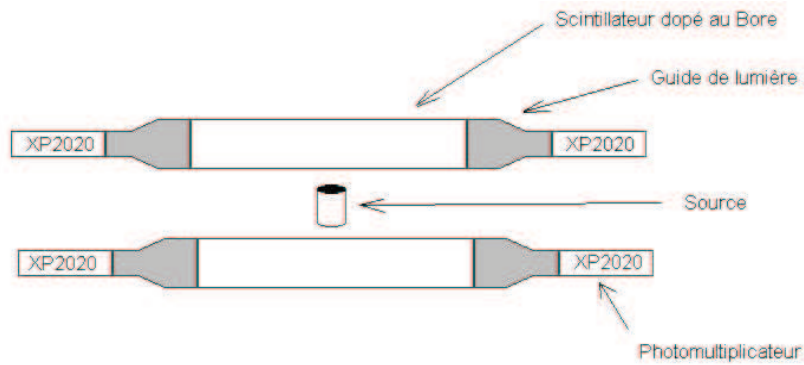


FIG. 9.3: Schéma du dispositif de test préliminaire permettant de mesurer les multiplicités neutroniques.

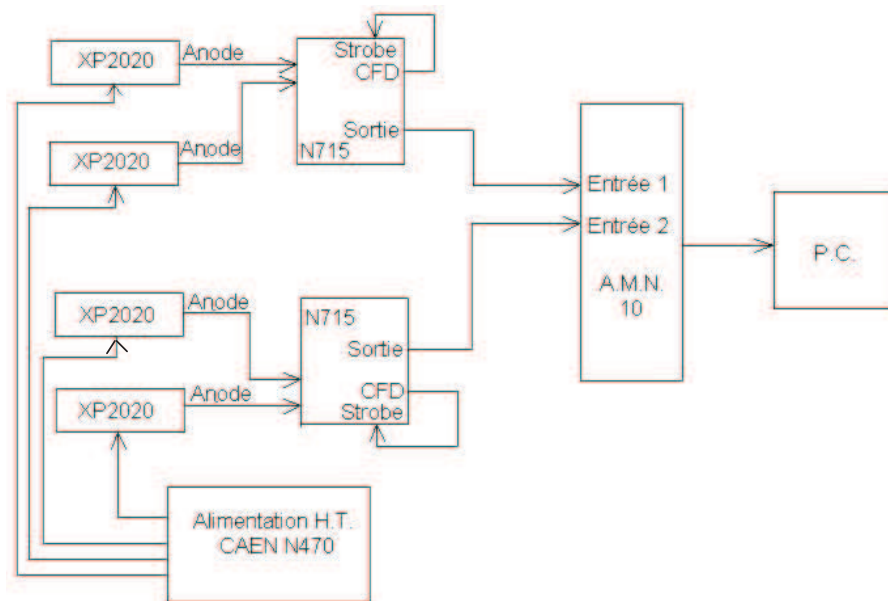


FIG. 9.4: Montage du dispositif permettant de mesurer les multiplicités neutroniques

avant d'être collectés par la photocathode d'un photomultiplicateur. En effet, la longueur de demi-atténuation pour ce type de scintillateur dopé ne dépasse pas quelques dizaines de cm. Or les interactions neutroniques ne génèrent pas beaucoup de photons de scintillation. Il est donc préférable d'avoir des détecteurs de courtes longueurs.

Les algorithmes présentés précédemment sont inclus dans le logiciel d'acquisition et de traitement Interwinner Neutron.

Le dispositif préliminaire testé est présenté sur la figure 9.3.

- La couverture de l'angle solide fourni par l'ensemble de détection n'est pas suffisante

en terme de nombre de détecteurs indépendants pour permettre de réaliser des coïncidences neutroniques. Le paramètre géométrique joue un rôle très important.

- La qualité des scintillateurs n'est pas uniforme et peut être améliorée.

Les résultats préliminaires n'ont pas permis de conclure quant aux réelles capacités de mesures des multiplicités neutroniques.

Afin d'améliorer la couverture de l'angle solide, il faut utiliser plusieurs ensembles de détection. Dans ce cas, une étude de la diaphonie entre les détecteurs doit être envisagée.

9.2 Les fibres dopées scintillantes

9.2.1 Fabrication de fibres dopées scintillantes

A titre exploratoire, des fibres scintillantes dopées au Bore ont été réalisées. Le diamètre de ces détecteurs en font des détecteurs sensibles uniquement aux neutrons thermiques. En effet, leur diamètre, qui est inférieur à 3 mm, ne leur permet pas d'avoir une probabilité significative d'interaction avec les neutrons rapides. Parallèlement, pour les gamma, la sensibilité est également faible à cause des petites dimensions de la partie sensible du détecteur. Par contre, la sensibilité aux neutrons thermiques demeure importante grâce au dopage par le Bore.

D'ailleurs, compte tenu du dopage en Bore 10, les fibres de 2 mm de diamètre sont quasiment opaques aux neutrons thermiques. ce qui signifie que tous les neutrons thermiques incidents sur la fibre dopée sont détectés et induisent un signal de capture.

La fabrication de la préforme² a été menée à bien au laboratoire. Le tirage de la fibre a été confié à la société Optektron. Cette dernière dispose du brevet CEA qui se rapporte à la fabrication et au tirage de fibres optiques plastiques scintillantes non dopées [Rebourgeard 99]. Les préformes sont des cylindres qui font au minimum 60 mm de diamètre et 40 cm de long. Ces dimensions sont imposées par le banc de tirage des fibres dont dispose cette société. Après tirage, la longueur de fibre optique disponible s'évalue en km.

Le principal problème du fibrage consiste à stabiliser le diamètre de la fibre optique étirée. Ce processus est rendu d'autant plus difficile par la présence éventuelle de bulles dans la préforme. Néanmoins, il a été possible de fibrer une préforme scintillante plastique dopée au Bore. Compte tenu des longueurs de demi atténuation, il n'est pas utile de fabriquer des longueurs supérieures à quelques mètres. Plusieurs échantillons ont pu être testés au laboratoire. Leurs qualités optiques, mesurée par Optektron, étaient très dispersées. Cette variation de la transparence est due à un temps de passage dans le four infra-rouge qui n'est pas le même pour toutes les fibres. Si ce temps est trop important, la fibre se dégrade par un vieillissement thermique prématuré.

²Cylindre de polymère scintillant dont les dimensions permettent de réaliser l'opération de tirage sur le banc de fibrage.

9.2. LES FIBRES DOPÉES SCINTILLANTES

9.2.2 Utilisation de fibres dopées scintillantes

La fibre scintillante utilisée possédait les meilleures performances optiques en ce qui concerne la transparence sur une longueur de 2 m.

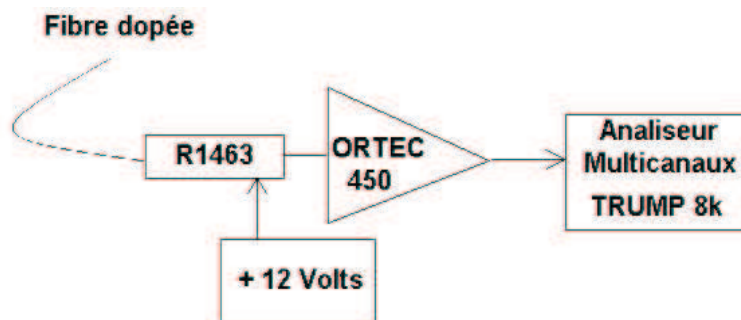


FIG. 9.5: Dispositif expérimental utilisé pour la mise en oeuvre d'une fibre scintillante dopée au Bore.

Le spectre présenté sur la figure 9.6 montre la distribution en amplitude, ce qui est équivalent à parler en nombre de photons ayant interagi avec la photocathode. Le dispositif expérimental est présenté sur la figure 9.5. Les fibres optiques sont montées sur des connecteurs standards de montage de fibre optique. Le dispositif est constitué d'un photomultiplicateur Hamamatsu R1463 dont le spectre de sensibilité de la photocathode correspond au spectre d'émission de la fibre scintillante qui est centré autour de 425 nm. De plus, la fenêtre d'entrée de ce photomultiplicateur n'a qu'un diamètre de 1 cm ce qui permet d'optimiser le couplage entre le dispositif maintenant la fibre et la photocathode. Le gain de ce photomultiplicateur vaut 10^6 dans les conditions de hautes tensions dans lesquelles il a été mis en oeuvre.

La source utilisée est, dans un cas une source de gamma de type Césium 137, et, dans l'autre cas une source AmBe thermalisée de neutrons. La présence d'un premier épaulement autour du canal 50 est caractéristique d'événements de capture des neutrons thermiques par les noyaux de Bore 10 ce qui révèle la présence de neutrons thermiques. Le second épaulement provient probablement de l'interaction des électrons Compton avec le scintillateur dont les photons de scintillation s'ajoutent à ceux déjà créés par l'ion alpha et l'ion Lithium.

Des fibres optiques de ce type ont été étudiées par Bross [Bross 97] pour en faire des appareillages de mesure pour le contrôle de sécurité des matières fissiles. Certains auteurs se sont également intéressés à la possibilité d'utiliser ces fibres scintillantes dopées au Bore afin de tester la présence d'émetteur neutronique dans les dispositifs de mesure qualifié de NDA ("Non Destructive Assay"). Le dispositif consiste à entourer le fût par une structure en polyéthylène dans laquelle la fibre optique est insérée [Grazioso 99].

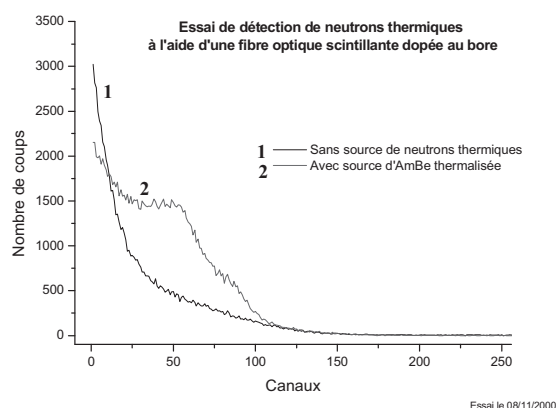


FIG. 9.6: Comparaison des spectres obtenus pour une fibre optique scintillante dopée au Bore soumise ou non à un flux de neutrons thermiques.

En conclusion, les fibres scintillantes peuvent permettre de détecter les neutrons thermiques. Il est néanmoins nécessaire de les combiner avec une structure modératrice afin de ralentir les neutrons provenant des fûts étudiés. Cependant, le faible rendement de conversion de l'énergie de la particule nucléaire et le faible parcours de la lumière impliquent des réalisations qui ne doivent pas dépasser une longueur de 1 mètre pour avoir des performances optimales.

9.3 Spectrométrie neutronique

9.3.1 Principe

Trois types de dispositifs peuvent être envisagés pour réaliser la spectrométrie neutronique. La limite pour l'énergie maximale du neutron incident est déterminée par les dimensions du détecteur³. Plus le détecteur est gros, plus l'énergie des neutrons à détecter pourra être importante. Le premier utilise un scintillateur organique solide ou liquide non dopé. Le second consiste à utiliser un sandwich de scintillateur organique non dopé et un scintillateur inorganique (par exemple un verre dopé au Lithium) sensible aux neutrons thermiques. Enfin, le troisième met en oeuvre un scintillateur organique dopé sensible à la fois aux neutrons rapides et aux neutrons thermiques.

- 1 - Un dispositif expérimental couramment utilisé met en oeuvre un scintillateur organique liquide de type NE213 qui est un scintillateur possédant de bonnes propriétés de discrimination neutron gamma. Ainsi, il est possible de réaliser une spectrométrie, en employant la méthode analogique du passage par zéro pour valider le signal neutron [Perkins 79] et [Arneodo 97]. L'utilisation du cristal de stilbène a également

³Par exemple, pour des neutrons de 1 MeV, un détecteur parallélépipédique doit posséder une épaisseur d'environ 5 cm afin de thermaliser le neutron incident.

9.3. SPECTROMÉTRIE NEUTRONIQUE

été étudiée par [Verbitsky 78] en utilisant également cette méthode analogique pour rejeter les événements provenant de l'interaction du rayonnement gamma avec le spectromètre.

- 2 - La combinaison de deux scintillateurs pour la réalisation du spectromètre a été mise en oeuvre par [Bertin 94]. Il s'agissait de combiner les performances de discrimination du scintillateur liquide NE213 à la capacité de détection des neutrons thermiques du NE905 qui est un verre dopé au Lithium. Dans ce montage, les deux scintillateurs sont disposés selon une structure en "sandwich". La méthode de discrimination utilisée combine la méthode analogique et la comparaison de charge et consiste en la mise en coïncidence de la double détection des neutrons par le scintillateur non dopé et le scintillateur dopé.
- 3 - Pour les scintillateurs organiques (liquide ou solide) dopés au Bore, la thermalisation et la capture du neutron s'effectuent dans le même milieu détecteur. Ces deux événements génèrent chacun un signal exploitable. Comme ils sont corrélés en temps, il est possible de mettre en relation les événements de capture avec ceux provenant de la thermalisation. Cette méthode impose de connaître de façon précise la durée de vie moyenne du neutron dans le détecteur. Les résultats donnés par cette méthode sont statistiques, puisque la durée de vie du neutron dépend de son énergie [Aoyama 93]. Ce type de dispositif peut être amélioré en ajoutant un cristal inorganique de BGO pour effectuer la détection du gamma de 478 keV émis dans 93 % des captures neutroniques. C'est ce type de montage qui a été retenu par [Drake 86] et [Miller 97] afin de réaliser un spectromètre à neutrons embarqué à bord d'un satellite.

Le dispositif mis en oeuvre durant ces travaux utilise un scintillateur plastique dopé au Bore. Le principe est le même que pour les scintillateurs organiques liquides dopés au Bore. Il consiste à séparer une voie temps de la voie énergie [Aoyama 93], afin d'exploiter au mieux la double impulsion provenant de la détection d'un neutron thermique qui s'est thermalisé au sein du détecteur.

9.3.2 Dispositif expérimental

Comme le montre le dispositif présenté sur la figure 9.7, le signal correspondant à une capture est sélectionné par la voie du SCA ("Single Channel Analyser") fenêtre qui réalise une discrimination en amplitude des impulsions correspondant à une capture neutronique. La voie correspondant à SCA niveau bas permet de s'affranchir du bruit de faible amplitude. L'impulsion correspondant à la thermalisation d'un neutron passe au travers de ce module puis est retardée de 3 μ s, ce qui est la durée moyenne de capture d'un neutron dans ce type de détecteur. Ce retard peut être ajusté afin de maximiser les performances du spectromètre. L'amplificateur rapide 2111 permet seulement d'inverser le signal de dynode afin de le rendre exploitable par les S.C.A..

Dès lors le signal retardé a une forte probabilité d'arriver au niveau du module de coïncidence (TC404) en même temps que le signal de capture. Ceci a pour effet d'autoriser le codage de l'analyseur (Trump 8k). Or le signal présent à l'entrée de l'analyseur multicanaux est le premier signal, celui qui correspond à la thermalisation. En effet, l'amplificateur permet de mettre en forme le signal. Le bloqueur sert de mémoire analogique pour le signal correspondant à la thermalisation. Le signal finalement codé est donc bien celui provenant de la thermalisation du neutron dans le scintillateur comme le montre le chronogramme présenté sur la figure 9.8.

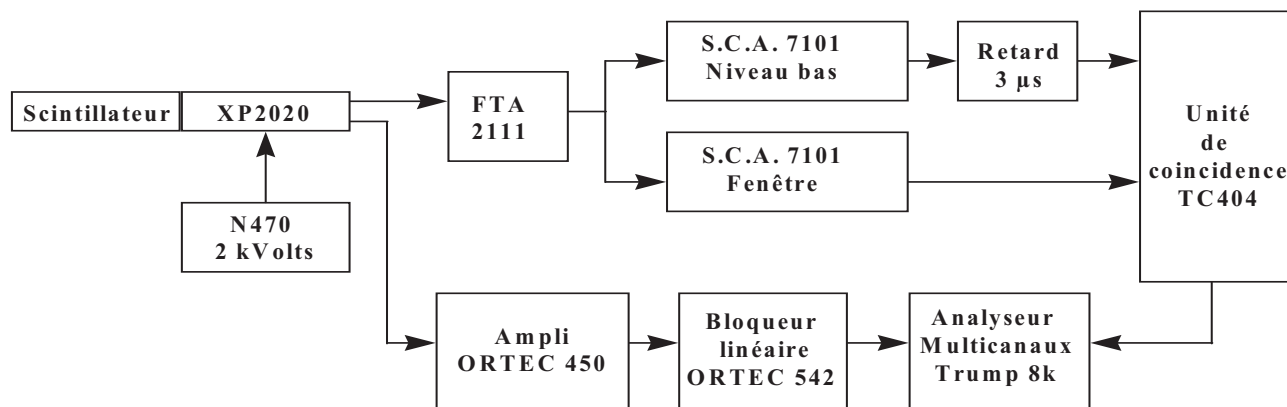


FIG. 9.7: Schéma du dispositif permettant de réaliser une spectrométrie neutronique par la technique de la double coïncidence.

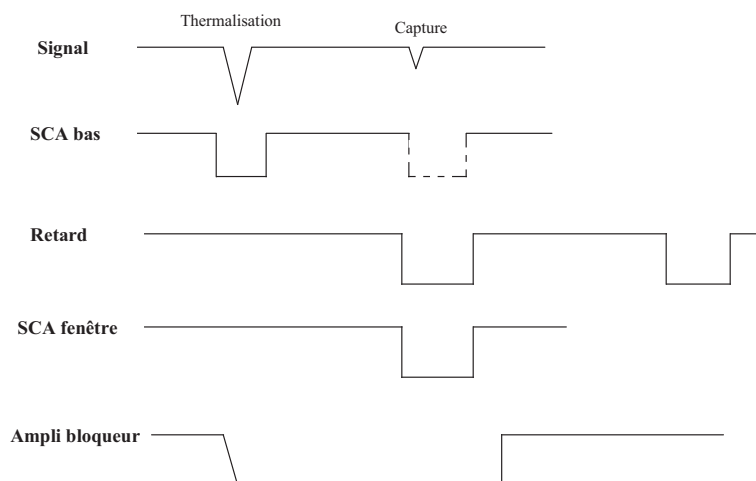


FIG. 9.8: Chronogramme du dispositif électronique utilisé pour réaliser une spectrométrie neutronique.

Pour la figure 9.9, le Canal 3 (Ch3) correspond aux évènements de capture. Le Canal 1 (Ch1) correspond à SCA bas qui sert à couper le bruit de fond de faible amplitude.

9.3. SPECTROMÉTRIE NEUTRONIQUE

L'évènement de thermalisation et de capture correspond aux impulsions vues par le Canal 1 (Ch1). L'impulsion vue par le Canal 2 (Ch2) correspond à un évènement de capture compte tenu des réglages du SCA fenêtre. La différence temporelle entre ces deux impulsions est de l'ordre de $2\ \mu\text{s}$, ce qui correspond à la durée de vie du neutron incident qui a été capturé. C'est pourquoi le signal provenant du SCA bas est retardé d'environ $3\ \mu\text{s}$. Ainsi, les deux signaux (thermalisation puis capture) provenant du même neutron arrivent simultanément sur le module de coïncidence. Le signal analogique correspondant à l'impulsion de thermalisation est conservé en mémoire analogique par le biais d'un amplificateur bloqueur. Le signal finalement codé par l'analyseur multicanaux provient bien d'un évènement de thermalisation.

Plus le signal de thermalisation est loin du signal de capture moins il y a de chances que les deux évènements soient corrélés, ce qui est confirmé par les simulations de la durée de vie du neutron dans ce type de scintillateur. De la précision avec laquelle la synchronisation des signaux est réglée dépend la qualité de la spectroscopie réalisée.

Pour la figure 9.10, il s'agit d'un chronogramme mettant en coïncidence temporelle les évènements de capture représenté par le Canal 4 (Ch4) et les évènement de thermalisation. L'histogramme présenté sur cette figure correspond à une accumulation des évènements opportuns.

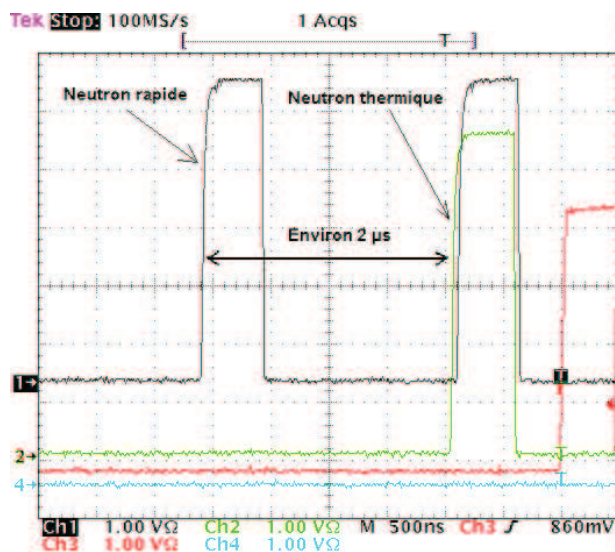


FIG. 9.9: Chronogramme de la voie temporelle du dispositif de spectrométrie neutronique

Pour réaliser une spectrométrie réaliste, il faut tenir compte du spectre de la source neutronique mais également de la fonction de réponse du scintillateur pour obtenir finalement ce spectre. Avant de pouvoir en faire une utilisation en spectroscopie, il faut être en mesure de le déconvoluer. Le rôle du paragraphe concernant l'étalonnage est de donner la réponse du scintillateur en fonction de l'énergie du neutron détecté.

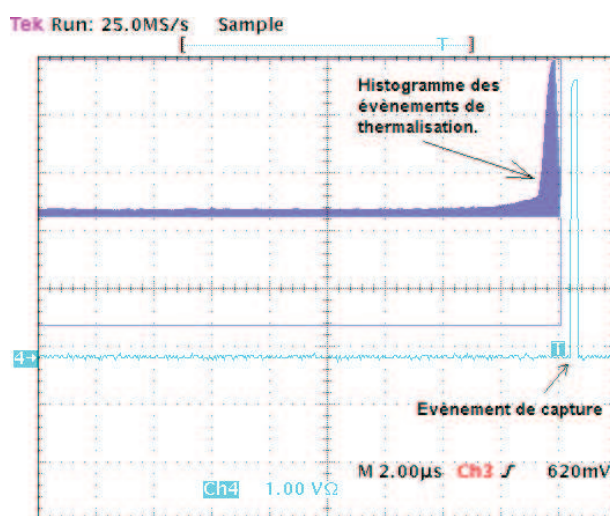


FIG. 9.10: Chronogramme accumulé pour la voie temporelle. La décroissance exponentielle à partir de la voie de déclenchement Ch4 de l'histogramme apparaît sur cette figure.

9.3.3 Etalonnage

Ce type d'expérience nécessite un étalonnage du dispositif. La production de neutrons nécessite l'utilisation d'un accélérateur. Des faisceaux de protons ou de deuton sont envoyés sur différentes cibles selon l'énergie des neutrons souhaitée. Le tableau 9.1 présente les caractéristiques de quelques cibles qui peuvent être utilisées pour obtenir des neutrons rapides à l'aide d'un faisceau de protons.

Type de cible	Plage d'énergie des neutrons	Faisceau incident
Li	100 keV → 700 keV	proton
TiT	700 keV → 2,5 MeV	proton
TiD	Au dessus jusqu'à 14 MeV	proton

Tableau 9.1: Cibles utilisées pour la production de neutrons

En modifiant l'angle entre le détecteur et la source de neutron, l'énergie des neutrons détectés est également modifiée suivant les lois de la cinématique.

Un tel dispositif produisant des faisceaux de neutrons mono-énergétique existe au CEA de Bruyères le Châtel (Cf. tableau 9.1). Dès que le plan de charge de cette installation le permettra, il sera possible de mener des expériences d'étalonnage avec des neutrons mono-énergétiques.

9.3.4 Evaluation par simulations des performances

En couplant les codes de transport neutronique et de génération et propagation de la lumière, il est possible d'évaluer par simulation quelle sera la réponse de l'ensemble de

9.4. DOSIMÉTRIE

détection. Il est possible de réaliser la coïncidence par sélection des événements pertinents correspondant à la fois à la thermalisation et à la capture du même neutron.

Les neutrons simulés sont mono-énergétiques. Deux énergies différentes ont été testées 250 keV et 10 MeV. Ils sont détectés par un scintillateur plastique dopé au Bore dont les dimensions permettent de thermaliser la majorité des neutrons incidents, quelque soit leur énergie. Intrinsèquement au code il est possible de sélectionner les événements dont la thermalisation et la capture se sont passés au sein du scintillateur.

Les résultats préliminaires sont présentés sur les figures 9.11 et 9.12. Le nombre de neutrons simulés par MCNP est à chaque fois de 1 million. Ceci génère environ 4000 événements pertinents, c'est à dire des événements dont les neutrons ont cédé une énergie suffisante pour engendrer un signal lumineux.

Les neutrons de 250 keV ne génèrent pas d'impulsions dont l'amplitude dépasse le canal 100 alors que les neutrons de 10 MeV engendrent des signaux dont l'amplitude dépasse le canal 8000, maximum du codeur, ce qui explique l'empilement des événements vers le canal 8000. Aucune structure particulière n'apparaît sur ces deux spectres. L'étude devrait être complétée pour une plage plus vaste d'énergie des neutrons incidents. Les simulations devraient être confirmées ou infirmées par une mesure auprès d'une source de neutrons monoénergétiques.

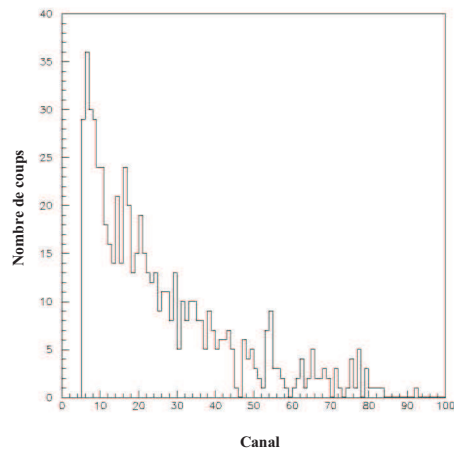


FIG. 9.11: Spectre neutronique simulé. Energie des neutrons égale à 250 keV.

9.4 Dosimétrie

Compte tenu de leur forte sensibilité vis à vis du rayonnement gamma et du rayonnement neutronique, il est intéressant d'utiliser les scintillateurs plastiques dopés au Bore pour la réalisation de dosimètre d'ambiance. Cet appareillage permet alors de donner une

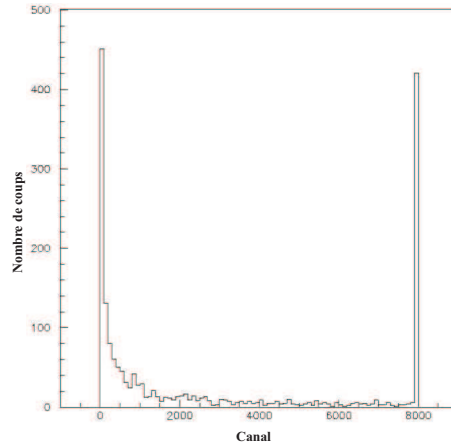


FIG. 9.12: Spectre neutronique simulé. Neutrons d'énergie égale à 10 MeV.

image de ce qu'a été ou de ce qu'est la dose et le débit de dose (immédiat ou intégré) reçu par l'appareillage ou le personnel.

Il convient de connaître avec précision le $Z_{efficace}$ de ce type de matériau. Le $Z_{efficace}$ est défini par l'équation 9.4 [Tsoulfanidis 95].

$$Z_{efficace} = \frac{\sum_{i=1}^N \left(\frac{W_i}{A_i} \right) * Z_i^2}{\sum_{i=1}^N \left(\frac{W_i}{A_i} \right) * Z_i} \quad (9.4)$$

- N est le nombre d'éléments différents présents dans le mélange scintillant,
- Z_i est le numéro atomique du i-ème élément,
- A_i est la masse atomique du i-ème élément,
- W_i est la fraction en poids du i-ème élément, qui vaut :

$$W_i = \frac{N_i * A_i}{M} \quad (9.5)$$

- N_i est le nombre d'atomes du i-ème élément dans le composé,
- A_i est son nombre de masse,
- M est la masse molaire.

Le calcul donne un $Z_{efficace}$ de 5,8 pour un scintillateur plastique dopé au Bore dont la masse volumique vaut $1,026 \text{ g.cm}^{-3}$. Or pour avoir un composé, considéré comme équivalent tissu, il faut un $Z_{efficace}$ de 7,4. Donc ce type de scintillateur est relativement proche du Z équivalent tissu, ce qui permet d'envisager d'éventuelles applications pour la dosimétrie neutron et éventuellement gamma.

L'avantage de ces scintillateurs est qu'il n'est pas nécessaire de développer un écran particulier pour rendre le détecteur sensible aux neutrons. En effet, le scintillateur est un

9.4. DOSIMÉTRIE

détecteur intrinsèquement sensible aux rayonnements neutroniques. L'information spectrométrique obtenue par le montage présenté précédemment peut être utilisée dans la reconstruction de la dose reçue vue par le détecteur. La sensibilité au rayonnement neutronique et gamma permet d'envisager une dosimétrie globale et partielle se rapportant aux différentes particules qui ont interagi au sein du scintillateur.

Récemment, certains auteurs se sont intéressés à la réalisation de mesures de dose gamma par scintillateurs plastiques [Lobdell 97] ou de mesures de dose en proton thérapie [Torrissi 00].

Chapitre 10

Conclusion

Ces travaux ont été consacrés à l'étude des scintillateurs plastiques dopés au Bore ainsi qu'à leur mise en oeuvre dans des dispositifs de détection neutronique. En effet, les scintillateurs plastiques dopés au Bore présentent des propriétés intéressantes pour la détection neutronique grâce à leur densité en noyaux de Bore 10 qui les rend intrinsèquement très sensibles aux neutrons thermiques. La structure fortement hydrogénée du scintillateur joue un double rôle en permettant de le rendre sensible aux neutrons rapides mais également en thermalisant au sein même du matériau les neutrons incidents. Elle diminue de façon importante le temps nécessaire au neutron incident pour qu'il perde l'essentiel de son énergie, et, pour qu'une fois thermalisé, il soit capturé par un noyau de Bore 10. Ce temps est appelé la durée de vie du neutron dans le détecteur. Des améliorations dans les dispositifs de détection neutronique étaient attendues grâce à l'utilisation de ces scintillateurs plastiques dopés au Bore, tant sur le plan de l'efficacité de détection, que sur celui de la durée de vie du neutron dans la structure du détecteur.

La première partie de ce travail a consisté à réaliser un état de l'art concernant à la fois les détecteurs neutroniques, et, plus spécifiquement, les scintillateurs organiques et inorganiques. Les études précédentes [Miller 98] et [Mauquest 99] n'avaient pas utilisé le scintillateur seul mais combiné avec un scintillateur inorganique de type BGO ou des écrans de polyéthylène combinés à un scintillateur inorganique de type verre dopé au Lithium 6. La détection du gamma de 478 keV¹ émis lors de la capture du neutron thermique permettait de confirmer l'évènement de capture. Notre approche a montré qu'il est possible de distinguer les neutrons thermiques des autres types de particules sans utiliser cette structure combinée pour le détecteur.

La seconde partie de cette étude a été consacrée au matériau proprement dit. En effet, la réalisation et la caractérisation des propriétés optiques et chimiques des scintillateurs plastiques dopés au Bore ont permis d'étudier de façon approfondie ce type de matériau, et, ainsi, d'optimiser le processus de fabrication. Ces méthodes ont été très utiles pour confirmer la présence ou l'absence du dopant ainsi que pour l'étude de la structure finale

¹ $n_{thermique} + {}^{10}\text{B} \rightarrow \text{Li}^* + \alpha$
 $\hookrightarrow \text{Li} + \gamma \text{ (478 keV)}$

du polymère constituant le scintillateur. Le choix du dopant est très important en terme de capacité de détection neutronique et en terme de production de lumière. Selon la molécule de dopant choisie, les phénomènes de "quenching" et d'atténuation optique intrinsèque au matériau sont plus ou moins marqués. Le dopage ainsi que le procédé de fabrication ont fait l'objet d'un dépôt de brevet auprès de l'I.N.P.I.².

Au cours de ces travaux, la production de lumière scintillante sous faisceaux de particules a été étudiée pour ces scintillateurs plastiques dopés au Bore. Pour simuler convenablement le comportement lumineux de ces matériaux, il est nécessaire de disposer des paramètres de luminescence propres au matériau, qui dépendent de la particule incidente ainsi que de son énergie. Nous avons donc mesuré, pour la première fois, les paramètres S, kB et C correspondant à la loi de Birks pour les scintillateurs plastiques dopés au Bore sous rayonnement alpha et protonique.

La troisième partie de cette étude, qui concerne plus spécifiquement la modélisation du détecteur, a été conduite selon trois axes :

- Simulation de la réponse neutronique du scintillateur et optimisation de la géométrie du détecteur en fonction des paramètres énergétiques du spectre des neutrons. La durée de vie du neutron a également été simulée. Celle-ci est estimée à moins de 3 μ s pour une énergie du neutron incident de 1 MeV.
- Simulation de la propagation de la lumière dans le scintillateur afin de connaître les paramètres géométriques qui l'influencent dans ces structures.
- Simulation du comportement neutronique global du scintillateur. Cette étape a consisté en l'adjonction de la simulation neutronique à celle concernant la production et la propagation de la lumière.

Le couplage réalisé a permis de montrer que la simulation globale de ce type de scintillateur était possible. La comparaison avec l'expérience a conduit à des résultats proches. Notamment, le pic correspondant à la capture des neutrons thermiques par les noyaux de Bore 10 qui apparaît sur les spectres expérimentaux, est également présent sur les spectres simulés.

Les scintillateurs plastiques sont très sensibles aux rayonnements gamma ce qui impose la mise en oeuvre de techniques de discrimination performantes. Ils sont environ 19 000 fois plus sensibles au rayonnement gamma que les détecteurs à base d'Hélium 3, essentiellement à cause de l'effet Compton. Même s'il n'est pas concevable d'utiliser des scintillateurs plastiques dopés au Bore dans des ateliers où les conditions radiologiques sont très sévères (par exemple dans l'atelier ACC³), il est envisageable de les utiliser pour des ateliers type AD2⁴ où les conditions de détections neutroniques ne sont pas brouillées par le bruit de fond intense provenant des émetteurs gamma présents dans les fûts de déchets. Ainsi, pour des fûts de déchets de faibles activités, il est justifié d'étudier l'opportunité

²Institut National de la Propriété Industrielle.

³Atelier de Compactage des Coques et embouts de COGEMA la Hague

⁴Atelier Déchets n°2 de COGEMA la Hague

de remplacer les structures à base de détecteurs à Hélium 3 et de blocs de polyéthylène par des ensembles à base de scintillateurs plastiques dopés au Bore. En fait, l'efficacité de détection des neutrons thermiques est 2,6 fois plus importante pour les scintillateurs plastiques dopés au Bore que pour les détecteurs à gaz à base d'Hélium 3.

Afin d'extraire l'information pertinente, des méthodes de discrimination entre les différentes particules ont été développées au cours d'une quatrième partie. L'utilisation du matériau en tant que détecteur dépend de la qualité avec laquelle la discrimination de particules s'effectue entre les neutrons rapides, les neutrons thermiques et les gamma. Les deux méthodes de discrimination, couramment mises en oeuvre pour effectuer la discrimination entre les neutrons et le rayonnement gamma dans les scintillateurs, ont été testées au cours de ce travail.

Les résultats expérimentaux montrent qu'avec la méthode analogique, dite du passage par zéro, il est possible de séparer convenablement le signal provenant du rayonnement gamma, de celui des neutrons rapides et de celui des neutrons thermiques. Tandis qu'avec la méthode numérique, dite de la comparaison de charges, seuls les neutrons rapides et le rayonnement gamma peuvent être discriminés. Une mise en oeuvre originale regroupant d'une part un montage analogique et d'autre part la méthode numérique de la comparaison de charges, a permis d'améliorer la séparation des signaux entre eux. Malgré ce dispositif, les neutrons thermiques sont difficilement distingués des autres particules par la méthode numérique, la charge qu'ils engendrent n'étant pas suffisante pour s'extraire d'elle-même du bruit de fond gamma. Néanmoins, la capacité de détection des neutrons thermiques par ce type de scintillateur n'est pas remise en cause. Une analyse en amplitude du signal permet toujours de séparer ce signal du bruit de fond. Ainsi, en couplant l'ensemble des méthodes de discrimination disponibles, il est possible de séparer efficacement les particules ayant interagi au sein du scintillateur.

Quelques applications potentiellement intéressantes pour ce type de scintillateur ont été présentées. A ce titre, la spectrométrie neutronique⁵ semble être prometteuse et une application valorisable par l'exploitation de la capacité du scintillateur à détecter à la fois des neutrons rapides et des neutrons thermiques. Les limites de détection en énergie pour les neutrons sont fixées par la géométrie du scintillateur (épaisseur). Par ailleurs, la combinaison du code de transport neutronique à celui de génération-propagation de la lumière de scintillation permet de prévoir la réponse globale de ces scintillateurs vis à vis des neutrons monoénergétiques. Des études complémentaires doivent être menées à bien afin d'étalonner le dispositif de mesure. Les dispositifs de contrôle des fûts faiblement et très faiblement actifs peuvent également profiter de l'utilisation de ces scintillateurs en raison de l'augmentation de l'efficacité de détection des neutrons thermiques d'un facteur 2,6 par rapport aux détecteurs à base d'Hélium 3. Enfin, la dosimétrie d'ambiance tirerait un intérêt certain dans l'utilisation de ces scintillateurs qui ont un $Z_{\text{équivalent}}$ relativement proche de celui du $Z_{\text{équivalent}}$ tissu.

⁵Détermination des énergies du flux de neutrons incidents sur le détecteur.

L'ensemble de ces travaux a donc permis de mieux comprendre et de mieux appréhender les propriétés de luminescence des scintillateurs plastiques dopés au Bore. La maîtrise de la fabrication a conduit à la détermination des facteurs d'influence du procédé sur les performances. La simulation globale du scintillateur a consisté en une modélisation complète de la réponse au flux neutronique du détecteur en utilisant les paramètres intrinsèques de luminescence mesurés lors d'expériences de caractérisation nucléaire de ce type de matériau scintillant. Enfin, les méthodes de discrimination mises en oeuvre ont montré la faisabilité d'une séparation des signaux provenant des neutrons thermiques, de ceux provenant des neutrons rapides et de ceux issus des interactions gamma.

Les propriétés de discrimination de ce détecteur peuvent être certainement améliorées par l'utilisation de composés scintillants favorisant la séparation des signaux grâce à un meilleur peuplement des états triplets (états à longue durée de vie vis à vis de la fluorescence prompt). Cette étude nécessitera le développement de nouveaux scintillateurs organiques. Parallèlement, des études complémentaires concernant les dispositifs électroniques sont à prévoir afin d'améliorer et d'optimiser leurs performances de discrimination de particules.

En définitive, les scintillateurs plastiques dopés au Bore sont prometteurs pour la mesure de flux neutronique en faible ambiance gamma (typiquement inférieure à $1 \mu\text{Gy.h}^{-1}$). Par rapport à l'art antérieur, ces scintillateurs offrent des possibilités d'amélioration en terme d'efficacité de détection des dispositifs mesurant les déchets de T.F.A.⁶. Ils permettent également de séparer les neutrons provenant des fissions de ceux émis par les réactions (α, n). L'exploitation de leurs doubles capacités de détection neutronique et gamma permet d'envisager également une utilisation dans les portiques de détection d'actinides et ainsi de participer au contrôle de non prolifération des matières fissiles.

⁶Très Faible Activité

Références

- [Adams 64] ADAMS R.M. *Boron, Metallo Boron Compounds and Boranes*. John Wiley and Sons, 1964.
- [Ahmed 77] AHMED M. A comparative study of neutron - gamma discrimination properties of scintillators NE213, C₆H₆, C₆D₆ and stilbene. *Nuclear Instruments and Methods*, 1977, **Vol 143**, pp 255–257.
- [Aleksan 88] ALEKSAN R., BOUCHEZ J., BOUSSICUT M., DESANLIS T., JOURDE D., MULLIE J., PIERRE F., POINSIGNON L., PRACA R., ROUSSEL G., THOMAS J.F., COLLOT J., STUTZ A. et KAJFASZ E. Pulse shape discrimination with a 100MHz flash ADC system. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1988, **Vol A273**, pp 303–309.
- [Anisimova 69] ANISIMOVA G.I., DANELYAN L.S., ZHIGACH A.F., LAZARENKO V.R., SIRYATSKAYA V.N. et SOROKIN P.Z. Boron-loaded plastic scintillators. *Pribery i tekhnika eksperimenta*, 1969, **Vol 1**, pp 49–51.
- [Aoyama 92] AOYAMA T., OKA Y. et HONDA K. A neutron detector using silicon PIN photodiodes for personal neutron dosimetry. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1992, **Vol A314**, pp 500–594.
- [Aoyama 93] AOYAMA T., HONDA K., MORI C., KUDO K. et TAKEDA N. Energy response of a full-energy-absorption neutron spectrometer using boron-loaded liquid scintillator BC-523. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1993, **Vol A333**, pp 492–501.
- [Arneodo 97] ARNEODO F., CAVANNA F., PARLATI S., PIANO-MORTARI G., ROSSI C., TATANANNI E., VERDECCHIA M., BORIO-DI-TIGLIOLE A., CESANA A., TERRANI M., DOLFINI R., NARDO R., RAPPOLDI A., RASELLI G.L., ROSSELLA M. et VIGNOLI C. *Underground Neutron Spectrometry with a Liquid Scintillator Detector*. Rapport technique INFN/AE-97/52, INFN Laboratori Nazionali del Gran Sasso, 1997.
- [Badhwar 67] BADHWAR G.D., DENEY C.L., DENNIS B.R. et KAPLON M.F. The non linear response of the plastic scintillator NE102. *Nuclear Instruments and Methods*, 1967, **Vol 57**, pp 116–120.
- [Barashkov 96] BARASHKOV N.N., GUNDER O.A., VORONKINA N.I. et MILINCHUK V.K. Factors determining radiation stability of plastic scintillators. *Applied Radiation Isotopes*, 1996, **Vol 47**, No 11-12, pp 1557–1559.

- [Barnaba 98] BARNABA O., CHEN Y.B., MUSITELLI G., NARDO R., RASELLI G.L., ROSSELLA M. et TORRE P. A full-integrated pulse-shape discriminator for liquid scintillator counters. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1998, **Vol A410**, pp 220–228.
- [Bell 81] BELL Z.W. Tests on a digital neutron - gamma pulse shape discriminator with NE213. *Nuclear Instruments and Methods*, 1981, **Vol 188**, pp 105–109.
- [Berlman 73] BERLMAN I.B. et STEINGRABER O.J. Liquid scintillation solutions for pulse shape discrimination. *Nuclear Instruments and Methods*, 1973, **Vol 108**, pp 587–591.
- [Bertin 94] BERTIN A., BRUSCHI M., BYSTRITSKY V.M., CAPPONI M., CEREDA B., D'ANTONE I., D CASTRO S., GALLI D., GIACOBBE B., MARCONI U., MASSA I., MORONI C., PICCININI M., POLI M., SEMPRINI-CESARI N., SPIGHI R., STOLUPIN V.A., VECCHI S., VEZZANI A., VILLA M., VITALE A., WOZNAK J., ZAVATTINI G. et ZOCCOLI A. Performance of a coincidence neutron spectrometer with double pulse shape discrimination. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1994, **Vol A337**, pp 445–460.
- [Bicron 99] BICRON . *Organic Scintillators*. Saint Gobain Verres et Cristaux, Newbury, OHIO, Etats Unis, 1999.
- [Birks 51] BIRKS J.B. Scintillations from organic crystals : Specific fluorescence and relative response to different radiations. Physical Society LXIV, 1951.
- [Birks 58] BIRKS J.B. *Scintillation Counters*. Pergamon Press, 1958.
- [Briesmeister 97] BRIESMEISTER J.F. *MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code*. Rapport technique LA-12625-M, Los Alamos National Laboratory, 1997.
- [Britvich 98] BRITVICH G.I., GALEAZZI F., GOLOVSKIN S.V., MARTELOTTI G., MEDVEDKOV A.M., PENSO G., SOLOVJEV A.S. et VASIL'CHENKO V.G. *Scintillating Properties of Frozen New Liquid Scintillators*. Rapport technique CERN-EP/98-130, CERN, 1998.
- [Brooks 59] BROOKS F.D. A scintillation counter with neutron and gamma - ray discriminators. *Nuclear Instruments and Methods*, 1959, **Vol 4**, pp 151–163.
- [Brooks 79] BROOKS F.D. Development of organic scintillator. *Nuclear Instruments and Methods*, 1979, **Vol 162**, pp 477–505.
- [Bross 97] BROSS A.D., RUCHTI R.C. et WAYNE M.R. Applications of boron-loaded scintillating fibers as NDA tools for safeguards. The American Institute of Physics, 1997.

- [Buta 00] BUTA A., MARTIN T., TIMIS C., ACHOURI N., ANGELIQUE J.C., BORCEA C., CRUCERU I., GENOUX-LUBAIN A., GREVY S., LEWITOWICZ M., LIENARD E., MARQUES F.M., NEGOITA F., D OLIVEIRA F., ORR N.A., PETER J. et SANDU M. TONNERRE : An array for delayed neutron decay spectroscopy. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 2000, **Vol A455**, pp 412–423.
- [Byrd 92] BYRD R.C., AUCHAMPAUGH G.F., MOSS C.E. et FELDMAN W.C. Warhead counting using neutron scintillators : Detector development, testing, and demonstration. *IEEE Transaction on Nuclear Science*, 1992, **Vol 39**, No 4, pp 1051–1055.
- [Byrd 94] BYRD R.C. et URBAN W.T. *Calculations of the Neutron Response of Boron Loaded Scintillators*. Rapport technique LA-12833-MS, Los Alamos National Laboratory, 1994.
- [Cao 98] CAO Z. et MILLER L.F. Evaluation of pulse shape discrimination performance of scintillation materials and PSD methods by using statistical models. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1998, **Vol A416**, pp 32–44.
- [Chalupka 77] CHALUPKA A., STENGL G. et VONACH H. Temperature dependence of the pulse shape discrimination properties of NE213. *Nuclear Instruments and Methods*, 1977, **Vol 144**, pp 167–169.
- [Craun 70] CRAUN R.L. et SMITH D.L. Analysis of response data for several organic scintillators. *Nuclear Instruments and Methods*, 1970, **Vol 80**, pp 239–244.
- [Czirr 70] CZIRR J.B. A comparison of scintillator solvents for pulse shape discrimination. *Nuclear Instruments and Methods*, 1970, **Vol 88**, pp 321.
- [Czirr 99] CZIRR J.B. Capture-gated neutron spectrometry. Moscow, 1999.
- [Destruel 89] DESTRUEL P., TAUFER M., D’AMBROSIO C., VIA C. DA, FABRE J.P., KIRKBY J. et LEUTZ H. A new plastic scintillator with large stokes shift. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1989, **Vol A276**, pp 69–77.
- [Drake 86] DRAKE D.M., FELDMAN W.C. et HURLBUT C. New electronically black neutron detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1986, **Vol A247**, pp 576–582.
- [Drosg 80] DROSG M., DRAKE D.M. et LISOWSKI P. *The Contribution of Carbon Interactions to the Neutron Counting Efficiency of Organic Scintillators*. Rapport technique LA-7987-MS, Los Alamos National Laboratory, 1980.
- [Dupont 67] DUPONT H., PFEFFER G., LAUSTRIAT G. et COCHE A. Décroissance de l’intensité lumineuse des scintillateurs organiques. *Nuclear Instruments and Methods*, 1967, **Vol 47**, pp 93–99.

- [Eijk 01] EIJK CAREL W.E. VAN. Inorganic scintillator development. *Nucl. Instr. and Meth.*, 2001, **Vol A460**, pp 1–14.
- [Evans 61] EVANS R.D. *Le Noyau Atomique*. Dunod, 1961.
- [Fein 63a] FEIN M.M., BOBINSKI J., MAYES N., SCHWARTZ N. et COHEN M.S. Carboranes. i. the preparation and chemistry of 1-isopropenylcarborane and its derivatives (a new family of stable clovoboranes). *Inorganic Chemistry*, 1963, **Vol 2, No 6**, pp 1111–1115.
- [Fein 63b] FEIN M.M., GRAFSTEIN D., PAUSTIAN J.E., BOBINSKI J., LICHTSTEIN B.M., MAYES N., SCHWARTZ N.N. et COHEN M.S. Carboranes. II. the preparation of 1- and 1,2-substituted carboranes. *Inorganic Chemistry*, 1963, **Vol 2, No 6**, pp 1115–1119.
- [Feldman 95] FELDMAN W.C., BYRD R.C., BARRACLOUGH B.L., NORDHOLT J.E., FUNSTEN H.O., BOYNTON W.V., BAILEY S.H. et MOERSCH J. Calibration of a space thermal/epithermal neutron detector the mars observer gamma-ray spectrometer anticoincidence shield. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1995, **Vol A362**, pp 561–573.
- [German 81] GERMAN U. et SHANI G. A comparative study of neutron gamma discrimination and uniformity of long liquid scintillation detectors. *Nuclear Instruments and Methods*, 1981, **Vol 180**, pp 503–508.
- [Glasgow 74] GLASGOW D.W., VELKLEY D.E., BRANDENBERGER J.D. et MCELLISTREM M.T. Pulse shape discrimination for wide dynamic range neutron scattering experiments. *Nuclear Instruments and Methods*, 1974, **Vol 114**, pp 535–539.
- [Grazioso 99] GRAZIOSO R.F., HEGER A.S., ENSSLIN N., MAYO D.R., MERCER D.J., MILLER M.C. et RUSSO P.A. Feasibility of using boron-loaded plastic fibers for neutron detection. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1999, **Vol A422**, pp 59–63.
- [Greenwood 79] GREENWOOD L.R. et CHELLEW N.R. Improved boron 10 loaded liquid scintillator with pulse shape discrimination. *Review of scientific instruments*, 1979, **Vol 50, No 4**, pp 466–471.
- [Haas 98] HAAS R. et SWINHOE M. Uncertainty estimates for neutron coincidence measurements. *ESARDA bulletin*, 1998, **Vol 29**, pp 4–9.
- [Hamada 99] HAMADA M.M., RELA P.R., COSTA F.E. DA et D MESQUITA C. Radiation damage studies on the optical and mechanical properties of plastic scintillators. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1999, **Vol A422**, pp 148–154.
- [Harvey 79] HARVEY J.A. et HILL N.W. Scintillation detectors for neutron physics research. *Nuclear Instruments and Methods*, 1979, **Vol 162**, pp 507–529.

- [Heltsley 88] HELTSLEY J.H., BRANDON L., GALONSKY A., HEILBRONN L., REMINGTON B.A., LANGER S., VANDER-MOLEN A. et YURKON J. Particle identification via pulse shape discrimination with a charge integrating ADC. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1988, **Vol A263**, pp 441–445.
- [Heying 63] HEYING T.L., AGER J.W., CLARK S.L., MANGOLD D.J., GOLDSTEIN H.L., POLAK M. HILLMANAND R.J. et SZYMANSKI J.W. A new series of organoboranes. i. carboranes from the reaction of decaborane with acetylenic compounds. *Inorganic Chemistry*, 1963, **Vol 2**, **No 6**, pp 1089–1092.
- [Hirschberg 92] HIRSCHBERG M., BECKMANN R., BRANDENBURG U., BRÜCKMANN H. et WICK K. Precise measurement of birks kB parameter in plastic scintillators. *IEEE Transaction on Nuclear Science*, 1992, **Vol 39**, **No 4**, pp 511–513.
- [Horrocks 71a] HORROCKS D.L. et PENG C.-T. Organic scintillators and liquid scintillation counting, New York and London, 1971. Academic Press.
- [Horrocks 71b] HORROCKS D.L. et PENG C.-T. Oxygen quenching of electronically excited scintillators in solutions, New York and London, 1971. International conference on organic scintillators and liquid scintillation counting, Academic Press.
- [Housecroft 90] HOUSECROFT C.E. *Boranes and Metalloboranes. Structure, Bonding, Reactivity*. John Wiley and Sons, 1990.
- [Johnsonand 91] JOHNSONAND K.F. et WHITAKER H.L. Temperature treatment of plastic scintillator affects radiation hardness. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1991, **Vol A301**, pp 372–375.
- [Kallmann 47] KALLMANN H. *Natur und Technik*, July 1947.
- [Kamykowski 90] KAMYKOWSKI E.A. Analysis of mean lifetime for capture of neutrons in boron-loaded plastic scintillators. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1990, **Vol A299**, pp 105–110.
- [Kamykowski 92] KAMYKOWSKI E.A. Comparison of calculated and measured spectral response and intrinsic efficiency for a boron-loaded plastic neutron detector. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1992, **Vol A317**, pp 559–566.
- [King 65] KING T.A. et VOLTZ R. The time dependence of scintillation intensity in aromatic materials. *Proc. Roy. Soc.*, 1965, **Vol A280**, pp 424–430.
- [Knoll 89] KNOLL G.F. *Radiation Detection and Measurement*. 2nde edition, 1989.
- [Laboratories 84] LABORATORIES PACIFIC NORTHWEST. BC-454 boron loaded plastic scintillator. Tenth DOE Workshop on personal neutron dosimetry, June 1984.

- [Laisne 99] LAISNE C. *Logiciel Winnerneutron V1.33 Manuel d'Utilisation*. Eurisys Mesures 4 avenue des frênes 78180 Montigny le Bretonneux, 1999.
- [Lobdell 97] LOBDELL J.L. et HERTEL N.E. Photon spectra and dose measurement using a tissue-equivalent plastic scintillator. *Radiation Protection Dosimetry*, 1997, **Vol 72**, **No 2**, pp 95–103.
- [Majewski 98] MAJEWSKI S., WOJCIK R., KROSS B., FENKER H., ZORN C. et STEPANYAN S. Economical detectors based on safe liquid scintillators. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1998, **Vol A414**, pp 289–298.
- [Marin 00] MARIN E.M. ARIAS. *Synthèse D'oligomères et de Polymères Amphiphiles Conjugués; Élaboration En Couches de Langmuir-Blodgett et Étude de Leurs Propriétés Photo-Électroniques*. Thèse : Université Louis Pasteur de Strasbourg, 2000.
- [Martin 81] MARTIN S.D., WOOLVERTON H.L., YORK R.L., NATH S., SEKARAN K.K., HIEBERT J.C. et NORTHCLIFFE L.C. Measurement and parameterization of the response of NE102 to fast neutrons. *Nuclear Instruments and Methods*, 1981, **Vol 185**, pp 287–289.
- [Mauquest 99] MAUQUEST J., BOULLOT F. et LOUVEL M. *Scintillateur Pour Détecteur Neutronique*. Rapport technique 99 08780, INPI, 1999.
- [McElhaney 90] MCELHANEY S.A., BAUER M.L., CHILES M.M., EMMETT M.B. et TODD J.H. Monte carlo and experimental evaluation of BC-454 for use as a multienergy neutron detector. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 1990, **Vol 37**, **No 3**, pp 1351–1358.
- [Mech 73] MECH J.F. *Nuclear Power Reactor Instrumentation Systems Handbook*, volume 1. Harrer J.M. and Beckerley J.F., 1973.
- [Mercier 93] MERCIER J.P. et MARÉCHAL E. *Chimie Des Polymères, Traités Des Matériaux*. Presses Polytechniques et Universitaires Romandes, Suisse, 1993.
- [Milinchuk 99] MILINCHUK V.K., BOLBIT N.M., KLINSHPONT E.R., TUPIKOV V.I., ZHDANOV G.S., TARABAN S.B., SHELUKHOV I.P. et SMOLJANSKII S. Radiation-induced chemical processes in polystyrene scintillators. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1999, **Vol B151**, pp 457–461.
- [Miller 97] MILLER M.C., BYRD R.C., ENSSLIN N., FELDMAN W.C., KRICK M.S., PRETTYMAN T.H. et RUSSO P.A. Design of a fast neutron coincidence counter. *Applied Radiation and Isotopes*, 1997, **Vol 48**, **No 10-12**, pp 1549–1555.
- [Miller 98] MILLER M. C. *Neutron Detection and Multiplicity Counting Using a Boron Loaded Plastic Scintillator / Bismuth Germanate Phoswich Detector Array*. Rapport technique LA-13315-T, Los Alamos National Laboratory, 1998.

- [Moris 76] MORIS C.L., BOLGER J.E., HOFFMANN G.W., MOORE C.F., SMITH L.E. et THIESSEN H.A. A digital technique for neutron - gamma pulse shape discrimination. *Nuclear Instruments and Methods*, 1976, **Vol 137**, pp 397–398.
- [Moszynski 92] MOSZYNSKI M., BIZARD G., COSTA G.J., DURAND D., MASRI Y. EL, GUILLAUME G., HANAPPE F., HEUSCH B., HUCK A., PETER J., RING CH. et TAMAIN B. Study of neutron - gamma discrimination by digital charge comparison method for a large volume liquid scintillator. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1992, **Vol A317**, pp 262–272.
- [Moszynski 93] MOSZYNSKI M. Timing properties of philips XP2020UR photomultiplier. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1993, **Vol A324**, pp 269–275.
- [Moszynski 94] MOSZYNSKI M., COSTA G.J., GUILLAUME G., HEUSCH B., HUCK A. et MOUATASSIM S. Study of neutron - gamma discrimination with NE213 and BC501A liquid scintillators of different size. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1994, **Vol A350**, pp 226–234.
- [Mouatassim 95] MOUATASSIM S., COSTA G.J., GUILLAUME G., HEUSCH B. et MOSZYNSKI A. HUCK ANBD M. The light yield response of NE213 organic scintillators to charged particles resulting from neutron interactions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1995, **Vol A359**, pp 530–536.
- [Mozyński 77] MOZYNSKI M. et BENGTON B. Light pulse shapes from plastic scintillators. *Nuclear Instruments and Methods*, 1977, **Vol 142**, pp 417–434.
- [O'dian 94] ODIAN G. *La Polymérisation. Principes et Applications*. 1994.
- [Ogorodnikov 99] OGORODNIKOV I.N., PUSTOVARANOV V.A., KRUSHALOV A.V. et ISAENKO L.I. A time-resolved spectroscopy study of fast luminescence in lithium borates. Moscow, 1999.
- [Onge 75] ONGE R.S.T., GALONSKY A., JOLLY R.K. et AMOS T.M. Organic-scintillator pulse-shape discriminator signatures associated with high-energy neutrons. *Nuclear Instruments and Methods*, 1975, **Vol 126**, pp 391–395.
- [O'Rielly 96] O'RIELLY G.V., KOLB N.R. et PYWELL R.E. The response of plastic scintillator to protons and deuterons. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1996, **Vol A368**, pp 745–749.
- [Pai 89] PAI S., PIEL W.F., FOSSAN D.B. et MAIER M.R. A versatile electronic pulse shape discriminator. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1989, **Vol A278**, pp 749–754.

- [Papadopoulos 99] PAPADOPOULOS L. Scintillation response of organic and inorganic scintillators. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1999, **Vol A434**, pp 337–344.
- [Perkins 79] PERKINS L.J. et SCOTT M.C. The application of pulse shape discrimination in NE213 to neutron spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods*, 1979, **Vol 166**, pp 451–464.
- [Petr 88] PETR I., SEDA J., SOPKO B. et VIRAGH E. Properties of silicon photodiodes in neutron - gamma fields. *Radiation Protection Dosimetry*, 1988, **Vol 23(1-4)**, pp 441–443.
- [Petrillo 96] PETRILLO C., SACCHETTI F., TOKER O. et RHODES N.J. Solid state neutron detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1996, **Vol A378**, pp 541–551.
- [Photonis 00] PHOTONIS PHILIPS. *Photomultiplier Tube*. Imaging Sensor, 2000.
- [Pickrell 97] PICKRELL M.M., ENSSLIN N. et SHARPE T.J. *Application of Neutron Multiplicity Counting to Waste Assay*. Rapport technique LA-UR-97-0545, Los Alamos National Laboratory, 1997.
- [Puertolas 91] PUERTOLAS D. Thèse : *Matériaux de Coeur Pour Fibres Optiques Plastiques Scintillantes de Faible Diamètre : Préparation, Caractérisations, Étude de la Radioresistance*. 1991.
- [Ranucci 95] RANUCCI G.L. An analytical approach to the evaluation of the pulse shape discrimination properties of scintillators. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1995, **Vol A354**, pp 389–399.
- [Rebourgeard 99] REBOURGEARD PH., RONDEAUX F., BATON J.P., BESNARD G., BLUMENFELD H., BOURDINAUD M., CALVET J., CAVAN J.-C., CHIPPAUX R., GIGANON A., HEITZMANN J., JAENNEY C., MICOLON P., NEVEU M., PEDROL T., DIERREPONT D. et THÉVENIN J.-C. Fabrication and measurements of plastic scintillating fibers. *Nuclear Instrument and Methods in Physics Research*, 1999, **Vol A427**, pp 543–567.
- [Reeder 94] REEDER P. L. Thin GSO scintillator for neutron detection. *Nuclear Instrumenst and Methods in Physics Research*, 1994, **Vol A353**, pp 134–136.
- [Reft 88] REFT C.S. et KUCHNIR F.T. Experience in neutron dose measurements with mailable PIN diode. *Radiation Protection Dosimetry*, 1988, **Vol 23(1-4)**, pp 437–439.
- [Reilly 91] REILLY D., ENSSLIN N. et SMITH H. *Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials*. Rapport technique LA-UR-90-732, Los Alamos National Laboratory, 1991.
- [Saraf 88] SARAF S.K., BRIENT C.E., EGUN P.M., GRIMES S.M., MISHRA V. et PEDRONI R.S. Determination of the light response of BC-404 plastic scintillator for protons and deuterons with energies between 1

- and 11 MeV. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1988, **Vol A268**, pp 200–203.
- [Smith 68] SMITH D.L., POLK R.G. et MILLER T.G. Measurement of the response of several organic scintillators to electrons, protons and deuterons. *Nuclear Instruments and Methods*, 1968, **Vol 64**, pp 157–166.
- [Surugues 75] SURUGUES J. *Techniques Générales Du Laboratoire de Physique*. 2nde Edition CNRS, 1975.
- [Tilquin 95] TILQUIN I. Detection efficiency of the neutron modular detector DEMON and related characteristics. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1995, **Vol A365**, pp 446–461.
- [Toke 93] TOKE J., MASSERANT S.A., BALDWIN S.P., LOTT B., SCHRÖDER W.U. et ZHAO X. A simple pulse processing concept for a low cost pulse shape based particle identification. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1993, **Vol A334**, pp 653–656.
- [Torrissi 00] TORRISI L. Plastic scintillator investigations for relative dosimetry in proton-therapy. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 2000, **Vol B170**, pp 523–530.
- [Tsoulfanidis 95] TSOLFANIDIS N. *Measurement and Detection of Radiation*. Taylor and Francis, 2nde edition, 1995.
- [Tymianski 93] TYMIANSKI JACOB. *High Efficiency, High Resolution, Real-Time Radiographic Imaging System*. European Patent 0 606 732 A1, Nanoptics Inc., 1993.
- [Verbitsky 78] VERBITSKY S.S. Fast neutron spectrometer with pulse shape discrimination. *Nuclear Instruments and Methods*, 1978, **Vol 151**, pp 117–124.
- [Voltz 66] VOLTZ R., LOPES-DA-SILVA J., LAUSTRIAT G. et COCHE A. Influence of the nature of ionizing particles on the specific luminescence of organic scintillators. *The Journal of Chemical Physics*, 1966, **Vol 45**, No 9, pp 3306–3311.
- [Voltz 68a] VOLTZ R., DUPONT H. et LAUSTRIAT G. Radioluminescence des milieux organiques. II. vérification expérimentale de l'étude cinétique. *Le Journal de Physique*, 1968, **Vol 29**, Avril, pp 297–305.
- [Voltz 68b] VOLTZ R. et LAUSTRIAT G. Radioluminescence des milieux organiques. i. étude cinétique. *Le Journal de Physique*, 1968, **Vol 29**, Février - Mars, pp 159–166.
- [Wang 99] WANG S.C., HSU C.C., LEUNG R.W.S, WANG S.L., CHANG C.Y., CHEN C.P., CHENG K.C., HO T.I., LAI W.P., LIU H.M., MAO Z.P., SHIH I.C., WONG H.T. et YU Z.Q. A feasibility study of boron-loaded liquid scintillator for the detection of electron antineutrinos. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1999, **Vol A432**, pp 111–121.

- [Winyard 71] WINYARD R.A., LUTKIN J.E. et MCBETH G.W. Pulse shape discrimination in inorganic and organic scintillators. *Nuclear Instruments and Methods*, 1971, **Vol 95**, pp 141–153.
- [Winyard 72] WINYARD R.A. et MCBETH G.W. Pulse shape discrimination in inorganic and organic scintillators, II. *Nuclear Instruments and Methods*, 1972, **Vol 98**, pp 525–533.
- [Wolski 95] WOLSKI D., MOSZYNSKI M., LUDZIEJEWSKI T., JOHNSON A., KLAMRA W. et SKEPPSTEDT O. Comparison of neutron - gamma discrimination by zero-crossing and digital charge comparison methods. *Nuclear Instruments in Physics Research*, 1995, **Vol A360**, pp 584–592.
- [Yang 95] YANG X.H., NAYAK T.K., CHI C.Y., COLE B.A., NAGAMIYA S. et ZAJC W.A. Monte-carlo studies of the performance of scintillator detectors for time-of-flight measurement. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1995, **Vol A354**, pp 270–279.
- [Yokoi 85] YOKOI K. et OHBA Y. Quenching process of radioluminescence in anthracene crystals. *Journal of the physical society of japan*, 1985, **Vol 54, No 4**, pp 1634–1641.
- [Ziegler 94] ZIEGLER J.F. *TRIM : The Transport of Ions in Matter*. IBM Research Corporation, 1994.
- [Zorn 88] ZORN C., BOWEN M., MAJEWSKI S., WALKER J., WOJCIK R., HURLBUT C. et MOSER W. A new polyvinyltoluene-based, radiation-resistant plastic scintillator. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1988, **Vol A271**, pp 701–703.

Annexe A

Principaux radioéléments émetteurs de neutrons

Les tableaux suivants présentent les principales caractéristiques nucléaires des principaux émetteurs neutroniques susceptibles d'être trouvés dans les colis de déchets nucléaires.

Isotope	Z	N	T _{1/2} Totale (an)	T _{1/2} Fission spontanée (an)	Rendement de F.S. (n.s ⁻¹ .g ⁻¹)	Multiplicité des F.S. ν	Multiplicité des F.I. ν
²³² Th	90	142	1,41.10 ¹⁰	>10 ²¹	>6.10 ⁻⁸	2,14	1,9
²³² U	92	140	71,7	8.10 ¹³	1,3	1,71	3,13
²³³ U	92	141	1,59.10 ⁵	1,2.10 ¹⁷	8,6.10 ⁻⁴	1,76	2,4
²³⁴ U	92	142	2,45.10 ⁵	2,1.10 ¹⁶	5,02.10 ⁻³	1,81	2,4
²³⁵ U	92	143	7,04.10 ⁸	3,5.10 ¹⁷	2,99.10 ⁻⁴	1,86	2,41
²³⁶ U	92	144	2,34.10 ⁷	1,95.10 ¹⁶	5,49.10 ⁻³	1,91	2,2
²³⁸ U	92	146	4,47.10 ⁹	8,2.10 ¹⁵	1,36.10 ⁻²	2,01	2,3
²³⁷ Np	93	144	2,14.10 ⁶	1.10 ¹⁸	1,14.10 ⁻⁴	2,05	2,7
²³⁸ Pu	94	144	87,74	4,77.10 ¹⁰	2,59.10 ³	2,21	2,9
²³⁹ Pu	94	145	2,41.10 ⁴	5,48.10 ¹⁵	2,18.10 ⁻²	2,16	2,88
²⁴⁰ Pu	94	146	6,56.10 ³	1,16.10 ¹¹	1,02.10 ³	2,16	2,8
²⁴¹ Pu	94	147	14,35	2,5.10 ¹⁵	5.10 ⁻²	2,25	2,8
²⁴² Pu	94	148	3,76.10 ⁵	6,84.10 ¹⁰	1,72.10 ³	2,15	2,81
²⁴¹ Am	95	146	433,6	1,05.10 ¹⁴	1,18	3,22	3,09
²⁴² Cm	96	146	163 jours	6,56.10 ⁶	2,10.10 ⁷	2,54	3,44
²⁴⁴ Cm	96	148	18,1	1,35.10 ⁷	1,08.10 ⁷	2,72	3,46
²⁴⁹ Bk	97	152	320 jours	1,90.10 ⁹	1.10 ⁵	3,40	3,7
²⁵² Cf	98	154	2,646	85,5	2,34.10 ¹²	3,757	4,06

Tableau A.1: Rendement de fissions spontanées (F.S.) et induites (F.I.) de quelques radio-nucléides courants.

ANNEXE A. PRINCIPAUX RADIOÉLÉMENTS ÉMETTEURS DE NEUTRONS

$P(\nu)$	^{238}Pu F.S.	^{240}Pu F.S.	^{242}Pu F.S.	^{242}Cm F.S.	^{244}Cm F.S.	^{252}Cf F.S.	^{239}Pu F.I. 25 meV	^{239}Pu F.I. 2 MeV
0	0,054	0,066	0,068	0,021	0,015	0,002	0,011	0,006
1	0,205	0,232	0,230	0,147	0,116	0,026	0,099	0,061
2	0,380	0,329	0,334	0,327	0,300	0,127	0,275	0,227
3	0,225	0,251	0,247	0,327	0,33	0,273	0,327	0,326
4	0,108	0,102	0,099	0,138	0,184	0,304	0,205	0,259
5	0,028	0,018	0,018	0,037	0,043	0,185	0,073	0,096
6		0,002	0,003	0,003	0,009	0,066	0,010	0,022
7				0,001		0,015	0,001	0,003
8						0,002		0,001

ν_1	2,21	2,156	2,145	2,540	2,720	3,757	2,876	3,163
ν_2	3,957	3,825	3,794	5,132	5,939	11,962	6,748	8,240
ν_3	5,596	5,336	5,317	8,036	10,101	31,812	12,589	17,321

Tableau A.2: Tableau des multiplicités pour différents radio-isotopes où ν_i est le ième moment correspondant à la multiplicité, c'est à dire le nombre moyen de neutrons émis pour le moment d'ordre 1.

$P(\nu)$	^{235}U F.I.	^{239}Pu F.I.
0	0,033	0,011
1	0,174	0,101
2	0,335	0,275
3	0,303	0,324
4	0,123	0,199
5	0,028	0,083
6	0,003	0,008

ν_1	2,406	2,879
ν_2	4,626	6,773
ν_3	6,862	12,630

Tableau A.3: Tableau des multiplicités pour différents radio-isotopes où ν_i est le ième moment de la multiplicité, c'est à dire le nombre moyen de neutrons émis pour le moment d'ordre 1.

$P(\nu)$	^{240}Pu F.S. seule	^{240}Pu F.S. + ^{239}Pu F.I. (M=1,04)
0	0,066	0,066
1	0,232	0,227
2	0,329	0,318
3	0,251	0,242
4	0,102	0,101
5	0,018	0,025
6	0,002	0,010
7	0	0,005
8	0	0,003
9	0	0,002
10	0	0,001
<hr/>		
ν_1	2,156	2,240
ν_2	3,825	4,712
ν_3	5,336	10,362

Tableau A.4: Exemple de modification dans la distribution de la multiplicité neutronique selon qu'il s'agisse de F.S. (Fission Spontanée) ou de F.S. couplée à la F.I. (Fission Induite) en tenant compte d'un effet multiplicatif dû à la masse de 1,04. Le ν_i est le ième moment de la multiplicité considéré.

Elément	Rdt de production neutron pour 10^6 alpha d'énergie 4,7 MeV	Rdt de production neutron pour 10^6 alpha d'énergie 5,2 MeV	Energie moyenne (MeV) du neutron pour un alpha de 5,2 MeV
Li	$0,16 \pm 0,04$	$1,13 \pm 0,2$	0,3
Be	44 ± 4	65 ± 5	4,2
B	$12,4 \pm 0,6$	$17,5 \pm 0,4$	2,9
C	$0,051 \pm 0,002$	$0,078 \pm 0,004$	4,4
O	$0,040 \pm 0,001$	$0,059 \pm 0,002$	1,9
F	$3,1 \pm 0,30$	$5,9 \pm 0,6$	1,2
Na	$0,5 \pm 0,5$	$1,1 \pm 0,5$	
Mg	$0,42 \pm 0,03$	$0,89 \pm 0,02$	2,7
Al	$0,13 \pm 0,01$	$0,41 \pm 0,01$	1,0
Si	$0,028 \pm 0,002$	$0,076 \pm 0,003$	1,2
Cl	$0,01 \pm 0,01$	$0,07 \pm 0,04$	

Tableau A.5: Rendement de production (alpha,n) pour divers éléments légers.

ANNEXE A. PRINCIPAUX RADIOÉLÉMENTS ÉMETTEURS DE NEUTRONS

$P(\nu)$	^{235}U F.I.	^{239}Pu F.I.
0	0,033	0,011
1	0,174	0,101
2	0,335	0,275
3	0,303	0,324
4	0,123	0,199
5	0,028	0,083
6	0,003	0,008
<hr/>		
ν_1	2,406	2,879
ν_2	4,626	6,773
ν_3	6,862	12,630

Tableau A.6: Tableau des multiplicités pour différents radio-isotopes où ν_i est le i ème moment de la multiplicité considéré, c'est à dire le nombre moyen de neutrons émis pour le moment d'ordre 1.